

Strömungsmechanische Modellierung eines Brenngaserzeugungssystems

Florian Scharf

Forschungszentrum Jülich GmbH
Institut für Energie- und Klimaforschung (IEK)
Brennstoffzellen (IEK-3)

Strömungsmechanische Modellierung eines Brenngaserzeugungssystems

Florian Scharf

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment

Band / Volume 138

ISSN 1866-1793

ISBN 978-3-89336-784-9

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek.
Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der
Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte Bibliografische Daten
sind im Internet über <<http://dnb.d-nb.de>> abrufbar.

Herausgeber und Vertrieb: Forschungszentrum Jülich GmbH
Zentralbibliothek, Verlag
D-52425 Jülich
Telefon (02461) 61-5368 · Telefax (02461) 61-6103
E-Mail: zb-publikation@fz-juelich.de
Internet: <http://www.fz-juelich.de/zb>

Umschlaggestaltung: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Druck: Grafische Medien, Forschungszentrum Jülich GmbH

Copyright: Forschungszentrum Jülich 2012

Schriften des Forschungszentrums Jülich
Reihe Energie & Umwelt / Energy & Environment Band / Volume 138

D 82 (Diss., RWTH Aachen University, 2012)

ISSN 1866-1793
ISBN 978-3-89336-784-9

Vollständig frei verfügbar im Internet auf dem Jülicher Open Access Server (JUWEL)
unter <http://www.fz-juelich.de/zb/juwel>

Alle Rechte vorbehalten. Kein Teil des Werkes darf in irgendeiner Form (Druck, Fotokopie oder
in einem anderen Verfahren) ohne schriftliche Genehmigung des Verlages reproduziert oder
unter Verwendung elektronischer Systeme verarbeitet, vervielfältigt oder verbreitet werden.

Fluid Dynamics Simulations of a Fuel Processing System

Abstract

The present thesis deals with the topic of the complete fluid dynamic modelling of the key components of a fuel processing system and based on it the development of the next generation reactors.

Fuel cell auxiliary power units enable an energy efficient power generation for mobile applications with higher on-board power consumption. Enabling the operation of the fuel cell with the available middle-distillate on-board, the fuel is transformed to an hydrogen-rich gas in a fuel processing system consisting of the key components autothermal reformer, water-shift reactor and catalytic burner. The modules of the fuel processing system are thereby integrated within the reactors to obtain a lightweighted and compact overall system. The complete numerical description of these systems are based on chemical-reaction models, vaporization models of fuel and water in the integrated reactant treatment and as well on models for the integrated heat-exchanger. The strong interaction between the single reactor zones require therefore modelling of the key components as an overall reactor system.

The methodology of the present thesis is based on a tight integration of CFD simulations with experimental analysis and the construction of the reactors. The results of carried out prototypetestings, post-mortem-analysis and laboratory experiments are taken as basis for the CFD modelling and the reactor construction. As numerical tool for fluid dynamic modelling the CFD software FLUENT was used.

In the context of this thesis the CFD modelling library was extended with the purpose of the complete description of key components in the CFD overall model. In these CFD overall models the thermal interactions between the reactor zones as well as the influence of the pulsating fuel injection and the chemical reactions are taken into account. For this purpose a similarity theoretical CFD model of the pulsating fuel injection was generated based on results from prototypetestings and high-speed microscopy allowing the modelling of the stationary wide modular fuel injection and fuel mixture systems. Hereby the operating window of the autothermal reformer could be enlarged to a minimal load of smaller than 25 %. A fundamental model describing the droplet-wall-interaction at high wall normal Webernumbers could be derived from laboratory experiments and flow visualisation testings. The neglect of percussion effects in the CFD standard models results in an overdimensioning of the heat exchangers of about 20 % while the exact model ensures a compact reactor design and the functionality of the heat exchangers.

The next generation key components of the fuel processing systems were developed based on these derived CFD models. The reactors are characterised by a higher modulation capability and a simplified and compact design of the integrated heat exchangers.

Strömungsmechanische Modellierung eines Brenngaserzeugungssystems

Kurzfassung

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der vollständigen strömungsmechanischen Modellierung der Kernkomponenten eines Brenngaserzeugungssystems und darauf aufbauend der Entwicklung der nächsten Reaktorgeneration der Brenngaserzeugung.

Brennstoffzellen-Bordstrom-aggregate ermöglichen im mobilen Sektor eine energieeffiziente Stromerzeugung für Anwendungen mit erhöhtem Bordstrombedarf. Um den Betrieb der Brennstoffzelle mit dem an Bord verfügbaren Mitteldestillaten zu ermöglichen, wird der Kraftstoff in einem Brenngaserzeugungssystem mit den Kernkomponenten autothermer Reformers, Wassergas-Shiftreaktoren und katalytischer Brenner in ein wasserstoffreiches Gas umgewandelt. Um ein leichtes und kompaktes Gesamtsystem zu erreichen werden dabei Systemkomponenten der Brenngaserzeugung in die Reaktoren integriert. Die vollständige numerische Beschreibung erfordert somit neben Modellen der chemischen Reaktionen zusätzliche Modelle für die Verdampfung von Kraftstoff und Wasser in der integrierten Eduktaufbereitung sowie Modelle der integrierten Wärmeübertrager. Die starken systemtechnischen Wechselwirkungen zwischen den einzelnen Reaktorzonen erfordert dabei die Modellierung der Kernkomponenten als Gesamtreaktoren.

Die Methodik dieser Arbeit basiert auf der engen Verknüpfung der CFD-Simulationen mit experimentellen Analysen und der Konstruktion der Reaktoren. Als Grundlage der CFD-Modellbildung und der Reaktorauslegung wurden Prototypentests, *post-mortem*-Analysen und Laborexperimente durchgeführt. Als Werkzeug zur numerischen strömungsmechanischen Modellierung wurde die CFD-Software FLUENT verwendet.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die CFD-Modellbibliothek zur vollständigen Beschreibung der Kernkomponenten in CFD-Gesamtmodellen erweitert. In den Gesamtmodellen werden dabei sowohl die thermischen Wechselwirkungen zwischen den Reaktorzonen als auch der Einfluss der pulsierenden Einspritzung und der chemischen Reaktionen berücksichtigt. Anhand von Prototypentests und Hochgeschwindigkeitsmikroskopie wurde dazu ein ähnlichkeiththeoretisches CFD-Modell der pulsierenden Einspritzvorgängen hergeleitet. Dieses Modell erlaubt die Modellierung von stationären weit modulierbaren Einspritz- und Gemischbildungssystemen. Hierdurch konnte der Betriebsbereich der autothermen Reformers auf eine minimale Last von unter 25 % erweitert werden. Auf Basis von Laborexperimenten und Strömungsvisualisierungsversuchen wurde ein wesentliches Modell zur Beschreibung von Tropfen-Wand-Wechselwirkungen bei hohen wandnormalen Weberzahlen hergeleitet. Die Vernachlässigung der Pralleffekte in den CFD-Standardmodellen führt zu einer Überdimensionierung der Wärmeübertrager um etwa 20 %. Das genaue Modell stellt somit ein kompaktes Reaktordesign und die Funktionsfähigkeit der Wärmeübertrager sicher.

Auf Basis der hergeleiteten CFD-Modelle wurde die nächste Generation der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung entwickelt. Die Reaktoren zeichnen sich dabei durch eine erhöhte Modulierbarkeit und ein einfacheres und kompakteres Design der integrierten Wärmeübertrager aus.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung und Zielsetzung	1
1.1	Motivation	3
1.2	Zielsetzung	5
1.3	Methodik	6
1.4	Gliederung der Arbeit	7
2	Grundlagen der Brenngaserzeugung für Brennstoffzellen	9
2.1	Brenngaserzeugung aus Mitteldestillaten	9
2.1.1	Systemanforderungen einer HT-PEFC APU	9
2.1.2	Chemie der Brenngaserzeugung	10
2.1.3	Kinetik katalytischer Oberflächenreaktionen	17
2.1.4	Einfluss der Kraftstoffzusammensetzung	21
2.2	Wärmeintegriertes Brenngaserzeugungssystem	21
2.2.1	Integration der Verdampfer und Wärmetauscherkomponenten	21
2.2.2	Reaktoren der Brenngaserzeugung	24
2.2.3	Einspritzsysteme	24
2.3	Dampferzeugungssystem	27
2.3.1	Verdampfen	27
2.3.2	Siederegime	27
2.3.3	Strömungs- und Siedeverhalten des Zweiphasensystems Nassdampf	30
2.3.4	Siede- und Strömungsverhalten von Einzeltropfen und Tropfensprays	40
3	Theorie und Modelle der numerischen Strömungsmechanik	45
3.1	Allgemeine Aufgabenbeschreibung	45
3.2	Integrale und differentielle Bilanzierung von allgemeinen Erhaltungsgrößen	46
3.3	Grundgleichungen der numerischen Strömungsmechanik	46
3.3.1	Erhaltungsgleichungen	46
3.3.2	Navier-Stokes und Euler Gleichungen	47
3.3.3	Solver Theorie	48
3.3.4	Parallel Processing / HPC	49
3.4	Physikalische Modellgrundlagen	50
3.4.1	Turbulenz	50
3.4.2	Wärmeübertragung	53
3.4.3	Stoffgemische und Reaktionen	54
3.4.4	Mehrphasenströmung	57
3.4.5	Poröse Medien (<i>porous media</i>)	61

4	Stand der Technik	63
4.1	Reaktorentwicklung am IEK-3	63
4.2	Modulierbare Einspritzsysteme	66
4.2.1	Technische Zerstäuber für Mitteldestillate	66
4.2.2	Weit modulierbare Einspritzsysteme für Mitteldestillate	70
4.3	Integrierte Wärmeübertrager und Verdampfer in Brenngaserzeugungssystemen	70
4.4	CFD-Reaktormodellierung	73
4.5	Ableitung der Arbeitsschwerpunkte	74
5	Modellierung und Auslegung weit modulierbarer Einspritzsysteme	75
5.1	Modellierung einfacher Tropfensprays	75
5.1.1	Modellkraftstoffe für Kerosin	75
5.1.2	Düsen- und Spraycharakterisierung	77
5.1.3	Fehleranalyse der Dralldruckdüsen	80
5.1.4	Düsenmodellierung	82
5.2	Modellierung von Mehrdüsensystemen	82
5.2.1	Fallbeispiel Quenchstufe im Wassergas-Shiftreaktor WGS-5	83
5.3	Modellierung von instationären Einspritzphänomenen	86
5.3.1	Validierung der Verweilzeitanalyse am Fallbeispiel ATR 8	87
5.3.2	Validierung der lokalen Modellgenauigkeit am Fallbeispiel ATR 10	88
5.4	Herleitung eines pulsierenden Einspritzmodells	90
5.4.1	Hochgeschwindigkeitsanalyse der instationären Einspritzphänomene	90
5.4.2	ähnlichkeitstheoretische Anpassung der Modellparameter	92
5.5	Modellierung und Auslegung der pulsierenden Einspritzung am Fallbeispiel ATR 11	94
5.5.1	Konzeptvalidierung	94
5.5.2	Auslegung der pulsierten Einspritzung	96
5.5.3	Zusammenfassende Bewertung der Modelle und Methoden	100
6	Modellierung der chemischen Reaktionen	103
6.1	Experimentelle Analyse der Reaktionsverläufe	103
6.1.1	Statistische Untersuchung der autothermen Reformierung am Fallbeispiel ATR 9.2	103
6.1.2	Statistische Untersuchung der exothermen Vorreaktionen am Fallbeispiel ATR 9.2	105
6.1.3	Statistische Untersuchung der katalytischen Verbrennung am Fallbeispiel CAB 2.3	107
6.2	Modellierung der inhomogenen katalytischen Hauptreaktionen	107
6.2.1	Monolithcharakterisierung	108
6.2.2	Modellierung der Reaktionskinetik	109
6.2.3	Herleitung einer ähnlichkeitstheoretischen Modellierungsmethode der autothermen Reformierung	113

6.3	Modellierung der exothermen Vorreaktionen	116
6.3.1	Verweilzeitanalyse	116
6.3.2	Herleitung eines Matlab/Simulink Modells	118
6.3.3	CFD-Implementierung der angepassten Reaktionskinetiken	119
6.4	Zusammenfassende Bewertung der Modelle und Methoden	122
7	Modellierung und Auslegung der integrierten Wärmetauscher	125
7.1	Modellierung der Wärmeübertragung in einem aufgespritzten Tropfenspray	125
7.1.1	Experimentelle Untersuchung der Wärmeübergangsphänomene	125
7.1.2	Fehleranalyse und Herleitung der Wärmeübergangskoeffizienten	130
7.1.3	Herleitung des CFD-Modells für ebene Flächen	132
7.1.4	Herleitung eines geometriespezifischen CFD-Modells	136
7.1.5	Auslegung des integrierten Wärmetauschers im katalytischen Brenner CAB 3	139
7.2	Modellierung des Wärmeübergangs in dispersen Nassdampfströmungen	143
7.2.1	Nassdampfströmungen mit überkritischem Dampfanteil	143
7.2.2	Vereinfachte 2D Modellierung	144
7.2.3	Experimentelle Modellvalidierung und Fehleranalyse	145
7.2.4	Auslegung des Rohrwendel-Wärmetauschers im autothermen Reformier- ATR 10	146
7.3	Kombination der Modellierungsmethoden am Fallbeispiel ATR 11	150
7.3.1	Modellierung der Wärmeübertrager in einem CFD-Gesamtmodell	151
7.3.2	Fehleranalyse und Bewertung der CFD-Modellierung	155
7.4	Zusammenfassende Bewertung der Modelle und Methoden	156
8	Implementierung eines CFD-Gesamtmodells	159
8.1	Konzeptherleitung und Modellerstellung am Fallbeispiel des autothermen Re- formers ATR 12	159
8.2	Konzeptvalidierung des ATR 12 im implementierten 2D-Gesamtmodell	161
8.3	Konzeptvalidierung und Optimierung des ATR 12 im implementierten 3D- Gesamtmodell	164
8.4	Bewertung des implementierten CFD-Gesamtmodells	167
9	Zusammenfassung und Ausblick	169
9.1	Zusammenfassung	169
9.2	Ausblick	174

A	Anhang zu Kapitel 4	177
A.1	Designübersicht der autothermen Reformer ATR-5 bis ATR-9	177
A.2	CFD-Simulationen des WGS-4	179
A.3	Netzabhängigkeit der CFD-Simulationen	180
B	Anhang zu Kapitel 5	183
B.1	Stoffwerte des Kerosin-Modellkraftstoffs	183
B.2	Versuchsaufbau des Düsenteststands	185
B.3	Versuchsaufbau der Strömungsvisualisierungsexperimente	186
B.4	Pulsierende Einspritzung bei 100 % Last	187
C	Anhang zu Kapitel 6	189
C.1	Versuchsaufbau Druckverlustmessungen	189
C.2	WGS-Reaktionsmechanismus	190
C.3	Verweilzeitverhalten bei 25 % Last	191
C.4	Fehlerrechnung: VWZ-Summenkurven	192
C.5	Matlab/Simulink Modell	193
D	Anhang zu Kapitel 7	195
D.1	Versuchsaufbau der Verdampfungsversuche	195
	Nomenklatur	197
	Abbildungsverzeichnis	201
	Tabellenverzeichnis	207
	Literaturverzeichnis	209

1 Einleitung und Zielsetzung

Hauptaufgabe und Zielsetzung der globalen Energieversorgung ist die sichere Bereitstellung von Nutzenergie unter ökologisch und ökonomisch sinnvollen Rahmenbedingungen. Das heutige Energieversorgungssystem basiert zu einem Großteil auf der Verbrennung fossiler Primärenergieträger. Im Jahr 2010 wurden über 75 % der Energie aus fossilen Rohstoffen gewonnen [1]. Aus dieser einseitigen Fokussierung leiten sich zwei Hauptherausforderungen der Energieversorgung ab: die geringe statische Reichweite der fossilen Primärenergiereserven sowie der anthropogene Klimawandel in Folge der energiebedingten Treibhausgasemissionen (THG-Emissionen). Die statische Reichweite der fossilen Energiereserven ist, vor allem vor dem Hintergrund der Versorgungssicherheit und wirtschaftlicher Aspekte, problematisch. Eine signifikante Verlängerung der statischen Reserven ist durch die Erschließung neuer fossiler Energiequellen sowie eine erhöhte technologische Effizienz bei der Gewinnung zwar möglich [2], jedoch aufgrund der Klimaproblematik nicht zukunftsfähig. Die vom Menschen verursachten THG-Emissionen entstehen mit 57 % Anteil im Wesentlichen bei der Verbrennung fossiler Energieträger zur Energiegewinnung [3]. Die jährlichen Folgekosten des anthropogenen Klimawandels liegen in einem statischen Szenario bei wenigstens 5 % des globalen Bruttoinlandsproduktes [4]. Die diskutierten Effekte werden durch einen steigenden weltweiten Energiebedarf weiter verschärft. Prognosen der Vereinten Nationen gehen von einem Wachstum der Weltbevölkerung auf 9,3 Milliarden Menschen im Jahr 2050 aus [5]. Dieser Bevölkerungszuwachs entfällt dabei fast vollständig auf die Entwicklungsländer, in denen fortschreitende Technisierung und zunehmender Wohlstand den Energiebedarf pro Kopf noch weiter steigern [6]. Die ökonomischen Rahmenbedingungen in den Entwicklungsländern erschweren dabei den Einsatz von umweltfreundlichen und ressourcenschonenden Technologien zur Erfüllung der gesteigerten Energienachfrage. In einem statischen Szenario auf Basis der heutigen Energieversorgung führt diese Entwicklung zu einer Zunahme des weltweiten Energiebedarfs um 36 % bis ins Jahr 2035 [7].

Ein Aufrechterhalten der heutigen Energieversorgung ist unter Berücksichtigung der diskutierten Rahmenbedingungen nicht möglich. Aus den hergeleiteten Herausforderungen der Energieversorgung ergibt sich das in Abbildung 1.1 dargestellte Zieldreieck für die Entwicklung eines zukünftigen Energieversorgungssystems. Hierbei sind neben den Hauptanforderungen Versorgungssicherheit, Umweltverträglichkeit und Wirtschaftlichkeit weitere wichtige Einflussfaktoren und Wechselwirkungen im globalen Energieversorgungssystem berücksichtigt. Die Zuordnung der einzelnen Faktoren ist hierbei nicht immer eindeutig. Die Umstellung der Energieversorgung auf nachhaltige Primärenergieträger lässt sich sowohl der Versorgungssicherheit, als auch der Umweltverträglichkeit zuordnen. Die Entwicklung von energieeffizienten Technologien wirkt sich positiv auf alle drei Hauptfaktoren aus. Abbildung 1.1 zeigt Abhängigkeiten und Zielkonflikte der Energieversorgung. Regenerative Energien erfordern Backup- oder Speicherkapazitäten zur Sicherstellung der Versorgungssicherheit. Im Bereich der regenerativen Stromerzeugung sind weitere Entwicklungen im Bereich der Netztechnologie sowie ein Ausbau des Stromnet-

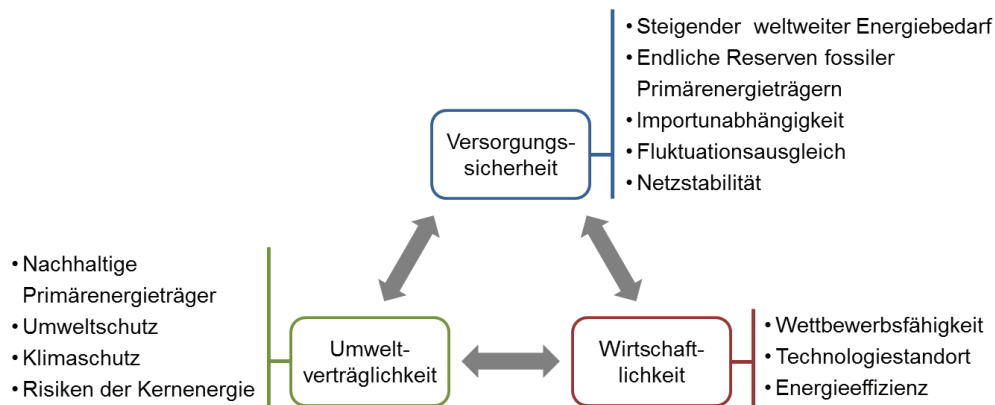


Abb. 1.1: Zieldreieck einer zukünftigen Energieversorgung

zes notwendig. Neben den klimaschädlichen Treibhausgasemissionen führt die energiebedingte Verbrennung fossiler Energieträger vor allem in Städten und Ballungsgebieten zu hoher Emissionsbelastung und schlechter Luftqualität. Gesetzlich festgelegte Emissionsgrenzwerte erfordern hier den Einsatz umweltfreundlicher Technologien. Ein erhöhter Investitions- und Technologiebedarf zur Sicherstellung von Versorgungssicherheit und der Umweltverträglichkeit stehen im Konflikt mit der geforderten Wirtschaftlichkeit der Energieversorgung.

Neben den diskutierten globalen Zielen leiten sich auf nationaler und staatenverbundlicher Ebene weitere Anforderungen aus den spezifischen politischen und gesellschaftlichen Rahmenbedingungen ab. Aus wirtschaftlichen, aber auch sicherheitspolitischen Gründen, wird eine strategische Unabhängigkeit der Energieversorgung von Importen angestrebt [8]. Die strategische Unabhängigkeit bezieht sich dabei nicht nur auf die Primärenergieträger, sondern auch die essentiellen Rohstoffe der Energiewandlungstechnologien. Ein weiteres strategisches Ziel ist der Aufbau der Forschung und Wirtschaft als Innovations- und Technologieführer im Energiesektor [8]. Die Bereitstellung von billiger und sicherer Energie ist dabei ein wichtiger Standortfaktor.

Die vorgestellten Ziele einer zukunftsfähigen Energieversorgung sind nicht mehr durch eine Fokussierung auf einzelne Energieträger und Energiewandlungssysteme zu erfüllen. Vielmehr bedarf es einer vielseitigen und somit flexiblen Energieversorgung, um die Versorgungssicherheit ressourcen- und umweltschonend und zugleich wirtschaftlich zu gewährleisten. Dies erfordert einen Umstieg auf nachhaltige Energieträger sowie die Entwicklung hocheffizienter Energiewandlungssysteme. Vor diesem Hintergrund besitzen Brennstoffzellen ein großes Potential für eine zukunftsfähige Energieversorgung. Im Vergleich zu konventionellen Energiewandlungstechniken zeichnen sich Brennstoffzellen durch einen hohen Wirkungsgrad über einen weiten Lastbereich aus. Wasserstoff zum Betrieb einer Brennstoffzelle kann als Sekundärenergieträger aus einer Vielzahl von Primärenergiequellen über chemische, elektrochemische oder biologische Prozesse erzeugt werden. Dies gewährleistet eine hohe Flexibilität in der Energieversorgung und ermöglicht gleichzeitig den Einsatz von Brennstoffzellentechnologie als Kernkomponen-

te eines Energiespeichersystems zum Fluktuationsausgleich. Wird der Sekundärenergieträger Wasserstoff hierbei aus regenerativen Primärenergiequellen gewonnen ist eine klimaneutrale Energieversorgung möglich.

1.1 Motivation

Im Jahr 2009 wurden in Europa 79,3 % der anthropogenen Treibhausgase energiebezogen emittiert. Die Energieindustrie hatte daran einen Anteil von 38,6 %, der Anteil des Transportsektors lag bei 25,5 % [9]. Im Jahr 2007 emittierte der Verkehrssektor in Deutschland 20 % der energiebedingten CO_2 -Emissionen, 38 % der energiebedingten SO_2 -Emissionen, 57 % der energiebedingten NO_x -Emissionen, und 52 % der energiebedingten Feinstaubemissionen [10]. Bei der Erfüllung der im vorangegangenen Abschnitt hergeleiteten Ziele einer zukünftigen Energieversorgung spielt der Verkehrssektor somit eine wichtige Rolle.

Als globales Ziel der internationalen Klimapolitik wurde eine maximale Temperaturerwärmung um 2 K in Bezug auf das vorindustrielle Niveau definiert [8]. Innerhalb der europäischen Union wurde hieraus als Ziel, eine Verminderung der THG-Emissionen bis 2050 um 80 % - 95 % gegenüber 1990 hergeleitet. Vor dem Hintergrund einer wettbewerbsfähigen CO_2 -armen Wirtschaft haben sich die Mitgliedstaaten der EU dabei verpflichtet bis 2020 ihre internen THG-Emissionen um mindestens 20 % zu senken, den Anteil von erneuerbaren Energien am Strommix auf 20 % zu erhöhen und die Energieeffizienz um 20 % zu steigern. Tabelle 1.1 zeigt das, anhand unterschiedlicher Szenarien bestimmte, THG-Einsparpotential einzelner Sektoren nach [8]. In Abhängigkeit der angenommenen Innovationsraten und der Preisentwicklung fossiler Primärenergieträger, lässt sich im Verkehrssektor eine Verminderung der THG-Emissionen um 54 % - 67% erzielen. Das Einsparpotential resultiert hierbei hauptsächlich aus technologischen Innovationen in den Bereichen der Fahrzeugeffizienz, der verwendeten Kraftstoffe und Energieträger sowie der effizienten und sicheren Nutzung des Verkehrssystems. Globale Szenarien zeigen eine mögliche Verminderung der THG-Emissionen bis 2050 um 40 % gegenüber 2005 [11]. Die Einsparungen resultieren hierbei zu etwa 15 % aus der Anpassung der Transportgewohnheiten und zu jeweils über 40 % aus dem Umstieg auf nachhaltige Primärenergieträger und der Steigerung der Energieeffizienz. Hierbei ist bis ins Jahr 2050 eine Verringerung des Energieverbrauchs im Verkehrssektor um etwa 50 % gegenüber dem IEA/WEO- *Reference Case-2008* möglich. Im Vergleich mit dem Jahr 2005 bedeutet dies einen leichten Rückgang des Energieverbrauchs. Der Anteil fossiler Kraftstoffe nimmt dabei von über 80 % im Jahr 2005 auf unter 50 % im Jahr 2050 ab. Entsprechend steigen die Anteile von Biokraftstoffen, Elektrizität und Wasserstoff am Energiemix im Verkehrssektor.

Die diskutierten Studien zeigen das hohe Einsparpotential der THG-Emissionen im Verkehrssektor. Hieraus leitet sich ein Bedarf an effizienten Energiewandlungstechniken auf Basis nachhaltiger Primärenergieträger ab. Ein wichtiger Beitrag zum Erreichen der hergeleiteten Ziele soll dabei durch einen Technologiewechsel hin zur Elektromobilität geleistet werden [12]. Im PKW-Sektor kann ein rein elektrischer und somit emissionsfreier Betrieb des Fahrzeugs durch *Plug-in*-Hybride, Elektrofahrzeuge mit Batterie und Elektrofahrzeuge mit Brennstoffzelle und Batterie realisiert werden. Reine Batteriefahrzeuge sind dabei aufgrund der kriti-

Tabelle 1.1: Emissionssenkungen einzelner Sektoren nach [8]

THG-Emissionsverringderung gegenüber 1990	2005	2030	2050
Insgesamt	-7 %	-40 % - -44 %	-79 % - -82 %
Sektoren			
Stromerzeugung (CO_2)	-7 %	-54 % - -68 %	-93 % - -99 %
Industrie (CO_2)	-20 %	-34 % - -40 %	-83 % - -87 %
Verkehr (einschl. CO_2 aus der Luftfahrt, ohne Seeverkehr)	+30 %	+20 % - -9 %	-54 % - -67 %
Wohnen und Dienstleistungen (CO_2)	-12 %	-37 % - -53 %	-88 % - -91 %
Landwirtschaft (nicht- CO_2)	-20 %	-36 % - -37 %	-42 % - -49 %
Andere Nichts- CO_2 -Emissionen	-30 %	-72 % - -73 %	-70 % - -78 %

schen „Unterwegs-Betankung“ und einer Reichweite von maximal 200 km vor allem für den innerstädtischen Verkehr und Kurzstrecken geeignet. Elektorfahrzeuge mit Brennstoffzelle und Batterie ermöglichen hingegen Reichweiten bis über 400 km [13]. In der Brennstoffzelle wird der Brennstoff dabei elektrochemisch oxidiert. Die chemische Reaktionsenergie wird somit direkt in elektrische Energie umgewandelt. Die Brennstoffzellen zeichnen sich dabei durch ein hohes Wirkungsgradpotential über einen weiten Lastbereich, niedrige Geräuschemissionen und einen geringen mechanischen Verschleiß aus. Der im Verkehrssektor eingesetzte Brennstoff Wasserstoff ermöglicht als Energiespeicher eine hohe Flexibilität in Bezug auf die Primärenergiequelle, wobei langfristig eine Wasserstoffversorgung auf Basis regenerativer Energie angestrebt wird. Die flächendeckende Einführung von Brennstoffzellen-PKW erfordert den Aufbau einer Wasserstoff-Infrastruktur.

Neben der Bereitstellung der Antriebsenergie bieten sich Brennstoffzellen zum Einsatz als Bordstromaggregat (*auxiliary power unit*, APU) an. Der vermehrte Einsatz von elektrischen Hilfs- und Komfortsystemen im Verkehrssektor führt zu einer stetigen Zunahme des *On-board*-Strombedarfs. Die Möglichkeit der Entkoppelung der Stromversorgung vom Primärtrieb eignet sich insbesondere für Fahrzeuge mit hohem Bordstrombedarf wie Flugzeugen, Schiffen und Kraftfahrzeugen. In der Regel steht dem Bordstromaggregat dabei ausschließlich der Kraftstoff des Primärtriebs zur Verfügung. Hierdurch wird ein erhöhter konstruktiver und logistischer Aufwand infolge eines zweiten Kraftstoffs an Bord verhindert. Es besteht somit die Notwendigkeit der *On-board*-Erzeugung eines wasserstoffreichen Gases aus dem entsprechenden Kraftstoff. Das Brenngaserzeugungssystem umfasst dabei Komponenten zur Eduktaufbereitung inklusive der Entschwefelung des Kraftstoffs, die Reformierung als Kernprozess der Brenngaserzeugung, sowie Komponenten zur Produktaufbereitung.

Für die Anwendung in einer APU wird das Brenngaserzeugungssystem (BGS) mit einer Brennstoffzelle gekoppelt. Aufgrund ihrer guten dynamischen Charakteristiken sind insbesondere Hochtemperatur-Polymer-Elektrolyt-Brennstoffzellen (HT-PEFC) für den Einsatz im Verkehrssektor geeignet [14]. Im Vergleich zu einer klassischen PEFC zeichnet sich dieser Brennstoffzellentyp durch ein höheres Nutzpotalential der Abwärme, ein vereinfachtes Wassermanagement sowie eine höhere Toleranz gegenüber Kohlenmonoxid aus. Im Gegensatz zur SOFC weisen

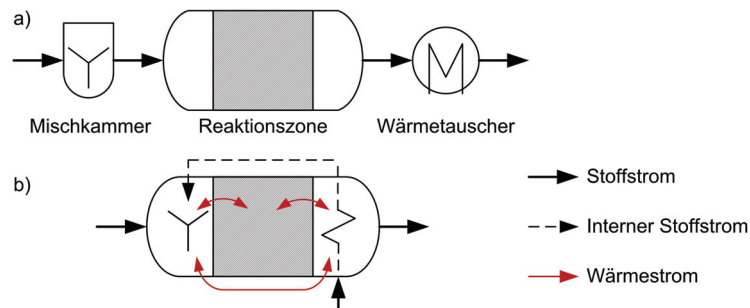


Abb. 1.2: Charakteristische Aufbau chemischer Reaktoren

HT-PEFCs eine gute mechanische Robustheit sowie ein schnelles Start/Stop-Verhalten auf. In der Anwendung im Flugzeug bildet die beschriebene Brennstoffzellen-APU ein multifunktionales System. Neben der Stromerzeugung stellt die APU hierbei Wärme zur Tragflächenenteisung, Wasser u.a. zur NO_x -Reduktion in den Strahltriebwerken und Gas zur Tankinertisierung zur Verfügung.

Der Einsatz der Brennstoffzellentechnologie als APU im mobilen Sektor erzwingt ein leichtes und kompaktes Systemdesign [15]. Hierzu werden im Brenngaserzeugungssystem des IEK-3 Wärmeübertrager und Komponenten zur Eduktaufbereitung in die Hauptreaktoren der Brenngaserzeugung integriert. Dies erfordert genaue Kenntnisse der internen Prozesse im System um Wechselwirkungen zwischen den Teilkomponenten in der Auslegung zu Berücksichtigen und um eine Überdimensionierung der Komponenten zu verhindern. Ein wichtiges Werkzeug zur Entwicklung des Brenngaserzeugungssystems ist dabei die numerische Strömungsmechanik (*computational fluid dynamics*, CFD).

1.2 Zielsetzung

Am IEK-3 hat der Einsatz von CFD-Simulationen in der Reaktorauslegung einen deutlichen Entwicklungssprung ermöglicht. Die ersten Modelle dienten dabei zur Optimierung der „Eduktvorbereitung und Gemischbildung in Reaktionsapparaten zur autothermen Reformierung“ [16]. Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, den erfolgreichen Ansatz der CFD-basierten Entwicklung von Teilkomponenten auf die gesamten Reaktoren der Brenngaserzeugung zu übertragen. Neben der Gemischbildung liegt der Fokus hierbei vor allem auf der Modellierung von integrierten Wärmetauschern und Verdampfern sowie der Reaktionszonen. Die dazu benötigten Teilmodelle stehen, wie Abbildung 1.2 zeigt, in starken systemtechnischen Wechselwirkungen miteinander. Die Zweiphasensysteme der Verdampfer benötigen Düsenmodelle als Eingangsparameter. Die Modellierung der Wärmetauscher erfordert die genaue thermische Einbindung der chemischen Reaktionen. Die Darstellung der chemischen Reaktionen wiederum basiert auf einer genauen Abbildung der porösen Katalysatorträger sowie der Eduktvorbereitung.

Eine effiziente Weiterentwicklung der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung ist somit nur in einem umfassenden Gesamtmodell der Komponenten möglich. Dies erfordert eine parallele und aufeinander abgestimmte Entwicklung der entsprechenden CFD-Modelle und Methoden. Eine einseitige Fokussierung auf einen Teilbereich ist nicht zielführend. Der Grad der Modellgenauigkeit soll hierbei in einem Gesamtmodell der Kernkomponenten einen weiteren Entwicklungssprung in der Reaktorauslegung ermöglichen. Vor diesem Hintergrund lassen sich für die vorliegende Arbeit die folgenden gleichwertigen Entwicklungsziele definieren:

1. Die Untersuchung der grundlegenden physikalischen Phänomene in den Kernkomponenten der Brenngaserzeugung und aufbauend die CFD-Modellbildung und Validierung zur Implementierung von CFD-Gesamtmodellen der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung.
2. Die Anwendung der hergeleiteten CFD-Modelle und Methoden zur Entwicklung der nächsten Generation der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung, mit einem besonderen Schwerpunkt auf der Integration der Wärmetauscher und Verdampfer sowie der Modularität des Systems.

1.3 Methodik

Die übergeordnete Methodik der vorliegenden Arbeit ist die CFD-gestützte Entwicklung der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung. Im Rahmen eines integrierten F&E-Ansatzes zeichnet sich dieser Prozess durch die enge Verknüpfung zwischen der numerischen Strömungsmechanik, den Experimenten und der Konstruktion aus. Die Berücksichtigung der starken Wechselwirkungen zwischen diesen klassisch getrennten Disziplinen ermöglicht eine effiziente Komponentenentwicklung. Abbildung 1.3 zeigt schematisch den iterativen Ablauf der CFD-gestützten Komponentenentwicklung. Die Experimente dienen hierbei nicht nur zur Validierung der Simulationen sondern liefern im Rahmen der Modellbildung wichtige Grundlagen der numerischen Beschreibung. Gleichzeitig ermöglichen CFD-Simulationen Experimente gezielt zu entwickeln und zu optimieren. Generell erfordern CFD-Simulationsergebnisse eine experimentelle Validierung durch Visualisierungsversuche und Prototypentests. Ebenso ist eine sorgfältige Bewertung der gewählten Modelle und Annahmen zur Beurteilung der Aussagekraft der Simulationsergebnisse notwendig. Parameterstudien und die Strömungsoptimierungen erfordern hingegen eine enge Abstimmung mit der Konstruktion, um ein ausgewogenes Verhältnis zwischen Effizienzsteigerung und konstruktivem Aufwand zu gewährleisten. Das enge Zusammenspiel zwischen der CFD-Simulationen und der Konstruktion führt zu einer anwendungsorientierten Konstruktion und ermöglicht das schnelle Design der Strömungskomponenten. Die Ergebnisse der Prototypentests und die Erfahrungswerten der Konstruktion und der *post-mortem*-Analysen bilden die iterative Basis der nächsten Entwicklungsstufe. Der nächste iterative Entwicklungsschritt kann dabei auf den selben CFD-Modellen beruhen, wodurch sich der Aufwand der Modellbildung und Validierung stark verringert. Erfordert die weitere Optimierung des Systems jedoch eine genauere Modellierung, sind die entsprechenden Experimente und Detailsimulationen durchzuführen.

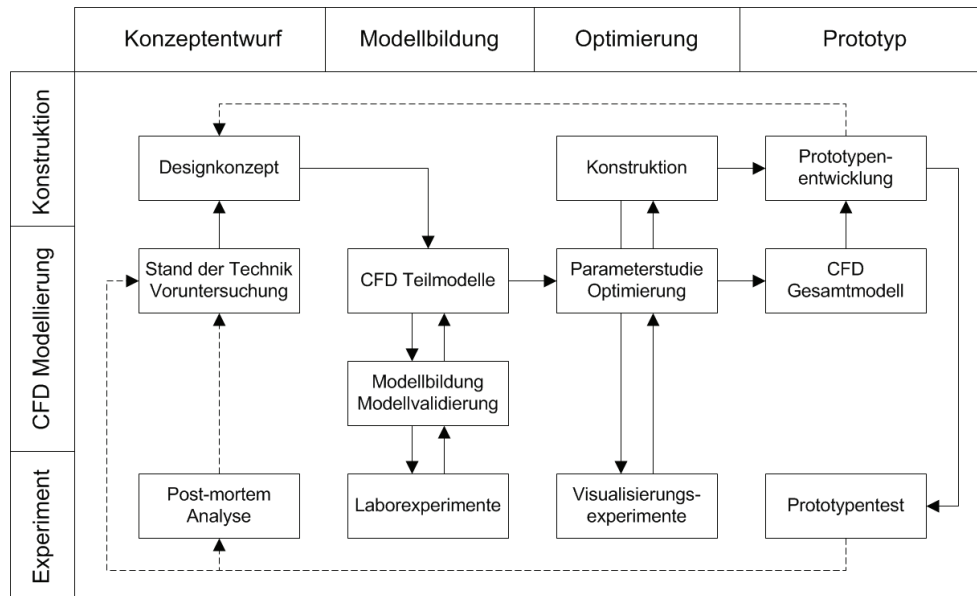


Abb. 1.3: Konzept der CFD-basierten Reaktorentwicklung [17]

1.4 Gliederung der Arbeit

Aus der Zielsetzung und der gewählten Methodik der Arbeit ergibt sich die folgende Strukturierung:

1. Zu Beginn dieser Arbeit werden in Kapitel 2 die theoretischen Grundlagen der Brenngaserzeugung erläutert. Aus der generellen Betrachtung werden dabei die charakteristischen physikalischen Phänomenen in den Reaktoren der Brenngaserzeugung abgeleitet und beschrieben.
2. Die vorgestellte Methodik dieser Arbeit basiert auf der strömungsdynamischen Modellierung der Reaktoren der Brenngaserzeugung. In Kapitel 3 werden die entsprechenden numerischen Modelle analog zu Kapitel 2 auf der Basis einer allgemeinen Betrachtung hergeleitet.
3. In Kapitel 4 wird, ausgehend von der Entwicklungshistorie, die Entwicklungsstrategie der Reaktoren der Brenngaserzeugung definiert. Darauf aufbauend wird eine umfassende Literatur- und Patentrecherche mit einem Fokus auf modulierbaren Einspritzsystemen und integrierten Wärmetauscher- und Reaktorkonzepten durchgeführt. Auf Basis der Analyse der theoretischen Grundlagen und des Stands der Technik werden die konkreten Ziele der Reaktorentwicklung und der CFD-Modellbildung hergeleitet und formuliert.

4. Die Kapitel 5 bis 7 befassen sich mit den in Kapitel 4 definierten Zielen der Reaktor- und CFD-Modellentwicklung. Die Gliederung der Kapitel folgt hierbei den in Abbildung 2.12 definierten charakteristischen Reaktorzonen Mischkammer, Reaktionszone und Wärmetauscher. Die identifizierten benötigten CFD-Modelle werden auf Basis theoretischer und experimenteller Ergebnisse hergeleitet. Die erarbeiteten CFD-Modelle und Methoden werden an Fallbeispielen zur Entwicklung der nächsten Generation der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung angewendet.
5. In Kapitel 8 werden die validierten CFD-Teilmodelle zu einem CFD-Gesamtmodell eines autothermen Reformers zusammengefügt. Anhand des Gesamtmodells erfolgt die Konzeptentwicklung eines autothermen Reformers auf Basis der in den vorangegangenen Kapiteln untersuchten Designmodifikationen.
6. Die Arbeit schließt mit einer Bewertung und Zusammenfassung der erarbeiteten Ergebnisse und einem Ausblick.

2 Grundlagen der Brenngaserzeugung für Brennstoffzellen

Im vorangegangenen Kapitel wurde der Bedarf an einer Brennstoffzellen APU für den mobilen Sektor erläutert. Darauf aufbauend wurden die übergeordneten Ziele dieser Arbeit bezüglich der CFD-basierten Weiterentwicklung des dazugehörigen Brenngaserzeugungssystems definiert. Im folgenden Kapitel werden die Theorie und die Grundlagen der Brenngaserzeugung für Brennstoffzellen detailliert vorgestellt.

2.1 Brenngaserzeugung aus Mitteldestillaten

Das am IEK-3 entwickelte Brenngaserzeugungssystem ist für den Einsatz in einer HT-PEFC APU konzipiert. Aus dem Einsatzbereich im mobilen Sektor leiten sich globale Anforderungen an das Gesamtsystem ab.

2.1.1 Systemanforderungen einer HT-PEFC APU

Als Ausgangsstoffe der Brenngaserzeugung dienen die Treibstoffe der jeweiligen Hauptantriebe wie Diesel für Lastkraftwagen und Eisenbahnen und Kerosin für Flugzeuge. Diese Stoffe gehören zu den Mitteldestillaten und bestehen aus bis zu einigen tausend unterschiedlichen Kohlenwasserstoffen. Das Brenngaserzeugungssystem muss für den Einsatz sämtlicher Mitteldestillate und entsprechender synthetischer Kraftstoffe (XtL) geeignet sein. Des Weiteren ist ein möglichst kleines und kompaktes System erforderlich [15]. Dies macht ein effizientes Wärmemanagement zwischen den einzelnen Komponenten erforderlich, so dass die APU als autarkes System ohne externe Hilfsysteme auskommt. Neben diesen globalen Systemanforderungen muss die Brenngaserzeugung im System auch die spezifischen Anforderungen der Brennstoffzelle erfüllen. Das Brenngaserzeugungssystem erzeugt ein Gasgemisch, das neben Wasserstoff vor allem Stickstoff, Wasser, Kohlenmonoxid, Kohlendioxid und Methan enthält. Die im APU System eingesetzte HT-PEFC stellt spezifische Ansprüche an die Qualität des Anodenfeedgases:

1. Die H_2 -Konzentration im Anodenfeedgas beträgt im Idealfall 100 % trocken. Im Reformatbetrieb der Brennstoffzelle sinkt die Zellspannung als eine Funktion des H_2 -Partialdrucks entsprechend der Nernst-Gleichung mit abnehmender Wasserstoffkonzentration. Je höher der Wasserstoffpartialdruck im Reformat ist, umso besser ist somit auch die Leistung der Brennstoffzelle [18].

2. Kohlenmonoxid wirkt in einer HT-PEFC als Katalysatorgift. Der zulässige Grenzwert der CO-Konzentration im Anodenfeedgas liegt bei einer Betriebstemperatur von 140 °C bei 1 %. Bei Betriebstemperaturen über 170 °C toleriert die HT-PEFC bis zu 3 % CO [18]. Das Brenngaserzeugungssystem ist für einen Grenzwert von maximal 1 % CO im Anodenfeedgas ausgelegt.
3. Methan im Anodenfeedgas wird in der HT-PEFC nicht umgesetzt, bindet Wasserstoff und verringert somit den Brennstoffnutzungsgrad des Systems. Gleichzeitig erfordert eine hohe CH₄-Konzentration eine aufwändige thermische Nachbehandlung des Anodenabgases.
4. Die Konzentration an Schwefel und Schwefelwasserstoffen im Anodenfeedgas muss unter der Toleranzgrenze der HT-PEFC von 10 ppm liegen [18].
5. Detaillierte Untersuchungen zu Grenzwerten der HCl-Konzentrationen im Anodenfeedgas sind nicht bekannt. In der Regel wird eine maximale Konzentration von 1 ppm genannt [16].

2.1.2 Chemie der Brenngaserzeugung

Aufgabe der Brenngaserzeugung ist die Bereitstellung von Brenngas für eine HT-PEFC gemäß der unter 2.1.1 spezifizierten Anforderungen. Ziel ist es dabei, auf der Basis der diskutierten Ausgangsstoffe, eine möglichst hohe Ausbeute an H₂ bei vollständigem Umsatz der Edukte zu erreichen. Die notwendigen Verfahrensschritte der Brenngaserzeugung sind:

1. die Aufbereitung des Kraftstoffs in der Entschwefelung sowie die weitere Aufbereitung sämtlicher Edukte zur Bildung eines homogenen Gasgemischs,
2. die Reformierung als zentralen Schritt der Brenngaserzeugung,
3. die Brenngasnachbehandlung zur Erfüllung der Reinheitsanforderungen der Brennstoffzelle an das Brenngas und
4. die thermische Verwertung des Anodenabgases zur Energie- und Wasserrückgewinnung und zur Erfüllung der Abgasgrenzwerte.

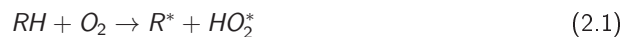
Die Aufbereitung des Kraftstoffs beinhaltet für schwefelhaltige Ausgangsstoffe als ersten Schritt einen Entschwefelungsprozess [19]. Das dazu erforderliche Entschwefelungssystem wird am IEK-3 parallel zum eigentlichen Brenngaserzeugungssystem entwickelt [20], [21] und wird im Rahmen dieser Arbeit nicht weiter diskutiert.

Im Folgenden werden die einzelnen Verfahrensschritte im Detail erläutert.

Gemischbildung

Der erste Schritt der Brenngaserzeugung ist die Aufbereitung des entschwefelten Kraftstoffs. Hierbei wird der Kraftstoff in überhitzten Wasserdampf eingespritzt, verdampft und zusätzlich mit heißer Luft gemischt. Die Gestaltung der Verdampfungs- und Mischzone erfordert eine genaue strömungsmechanische Auslegung, um eine Verkokung des Kraftstoffs zu verhindern und gleichzeitig eine homogene Gemischbildung zu gewährleisten [16]. In dem so erzeugten heißen Gasgemisch können in einem definierten Temperaturbereich exotherme Vorreaktionen auftreten. Die Niedertemperaturoxidation unterhalb der Selbstzündungstemperatur wird in den Reaktionsbereichen der langsamen Oxidation und der kalten Flamme unterschieden. Beide Mechanismen führen zu einer Teiloxidation des Brennstoffs. Die langsame Oxidation verläuft dabei bei niedrigeren Temperaturen und zeichnet sich durch eine geringe Reaktionsgeschwindigkeit und einen geringen Kohlenstoffumsatz aus. Charakteristisch für die kalte Flamme ist ein Kohlenstoffumsatz im Bereich von 30 - 80 % und ein Sauerstoffumsatz von unter 20 % [22]. Die kalte Flamme weist aufgrund des niedrigen Sauerstoffumsatzes nur eine geringe Ausbeute an Kohlenstoffoxiden auf. Das Produktgas enthält außer CO, CO₂ und dem nicht umgesetzten Kraftstoff ein großes Spektrum anderer Produkte, unter anderem etwa zu 50 % Olefine und zu etwa 40 % oxidierte Kohlenwasserstoffe.

Die kalte Flamme ist eine komplexe thermische Radikal-Kettenreaktion, in deren Verlauf eine Vielzahl von Zwischenprodukten mit unterschiedlicher Lebensdauer entsteht. Der Reaktionskomplex wird dabei durch die Bildung eines Radikals R* aus der Abspaltung von Wasserstoff aus einem Aliphathen RH initiiert.



Ausgehend vom Alkylradikal R* verlaufen die komplexen Reaktionsmechanismen in den Schritten Kettenfortpflanzung, Kettenabbruch, Kettenverzweigung und zweite Initiierung. Bei hohem Sauerstoffpartialdruck dominiert als folgender Reaktionsschritt die Reaktion des Alkylradikals mit Sauerstoff:



Die weiteren Reaktionsschritte verlaufen somit ausgehend vom Alkylperoxiradikal (RO₂*). Mit steigender Temperatur sinkt die Stabilität der Sauerstoffanbindungen am Alkylperoxiradikal, so dass es zu einem zunehmenden Zerfall des Radikals kommt. Hierdurch verschiebt sich das Gleichgewicht der Reaktion (2.2) auf die Eduktseite. Durch die verminderte Bildung der Alkylperoxidradikale sinkt der Umsatz der Kohlenwasserstoffe und des Sauerstoffs [22].

Der Reaktionskomplex der kalten Flamme wurde im 18. Jahrhundert erstmals von Sir Humphry Davy beschrieben. Der Begriff kalte Flamme ist dabei auf ein, nur in vollständig abgedunkelten Räumen erkennbares, schwaches blaues Leuchten der Reaktion zurückzuführen. Die Leuchterscheinung resultiert hierbei aus der Chemielumineszenz charakteristischer Teilreaktionen. Die Spektrallinien der Leuchterscheinung sind dabei identisch der Fluoreszenz von gasförmigem Formaldehyd [23]. Das schwache blaue Leuchten ist somit auf angeregtes Formaldehyd in chemielumineszenten Radikalreaktionen zurückzuführen [24].

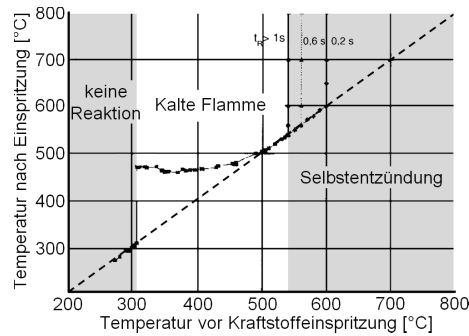


Abb. 2.1: Reaktionsbereich der kalten Flamme bei $p = 1$ bar und $\lambda = 1$ [25], [26]

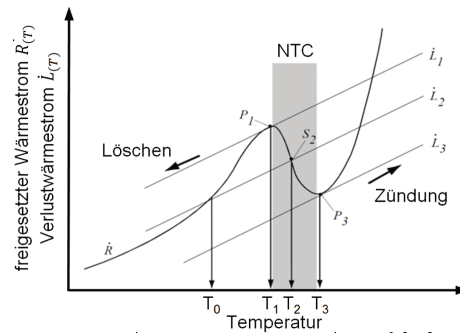
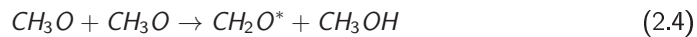
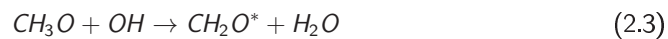


Abb. 2.2: Schematisches Stabilitätsdiagramm des Systems Heizöl - vorgewärmte Luft [27]



Das charakteristische Verhalten von kalte Flamme Reaktionen von Mehrkomponentensystemen wie den Mitteldestillaten lässt sich vereinfachend anhand der Gleichgewichtsreaktionen der Niedertemperaturoxidation (2.2) beschreiben [28]. Abbildung 2.1 zeigt für ein Heizöl-Luftgemisch die für die kalte Flamme charakteristische sprunghafte Zunahme der Gemischtemperatur bei einer Luft Eintrittstemperatur von 310 °C. Der Reaktionsverlauf der kalten Flamme ist dabei nur im geringen Maße vom eingesetzten Kraftstoff abhängig. Die Initiierungstemperatur sinkt jedoch mit zunehmender Kettenlänge der Alkane in Reaktion (2.1). Bei n-Dodekan erfolgt dieser Temperatursprung bei einer Initiierungstemperatur von 260 °C [25]. Bei Aromaten tritt keine Kalte Flamme auf [25]. Nach dem charakteristischen Temperatursprung ist die Gastemperatur nahezu unabhängig von der Initiierungstemperatur auf etwa 480 °C limitiert. Dieses Verhalten resultiert aus dem im Stabilitätsdiagramm in Abbildung 2.2 dargestellten negativen Temperaturkoeffizienten (NTC). Durch den diskutierten thermisch bedingten Zerfall der Alkylperoxiradikale verschiebt sich das Gleichgewicht in Reaktion (2.2) auf die Seite der Kohlenwasserstoffradikale. Hierdurch brechen die Radikal-Kettenreaktionen mit steigender Temperatur vermehrt ab. Der Umsatz an Kohlenwasserstoffen in der kalten Flamme nimmt ab.

Die Reaktionen der kalten Flamme weisen in der Regel ein periodisches Verhalten auf [24]. Die Stabilität der Reaktionen ist dabei wie Abbildung 2.2 zeigt, vom Verhältnis des freigesetzten Wärmestroms $\dot{R}_{(T)}$ zum Verlustwärmestrom $\dot{L}_{(T)}$ abhängig. Liegt der Verlustwärmestrom oberhalb von \dot{L}_1 kommen die Reaktionen zum Erliegen. Bei einem Verlustwärmestrom unterhalb von \dot{L}_3 kommt es zur Selbstzündung des Gasgemischs. Die kalte Flamme bildet hierbei die erste Stufe einer 2-Stufen-Zündung. Das Verweilzeitverhalten und die internen Wärmeströme

in den Bereich der Mischkammer haben somit einen großen Einfluss auf das Verhalten der kalten Flamme und müssen in der Mischkammerauslegung berücksichtigt werden.

Im Brenngaserzeugungssystem hat die kalte Flamme keinen Einfluss auf die Produktzusammensetzung am Austritt des Reformers [26]. Die durch das Auftreten der exothermen Reaktionen bedingte Temperaturerhöhung führt jedoch zu einer Verbesserung der Kraftstoffverdampfung und der Gemischbildung. Aufgrund der geänderten Gemischzusammensetzung am Monolitheintritt ändert sich der Reaktionsverlauf der Reformierungsreaktionen im Monolithen.

Dampfreformierung

Dampfreformierung (*steam reforming*, SR) bezeichnet die allotherme Umwandlung von Kohlenwasserstoffen (C_nH_m) und Wasserdampf in Synthesegas. Die stark endotherme Reformierungsreaktion (2.5) kann für $n \neq 1$ im üblichen Temperaturbereich der Reformierung von $TR > 500\text{ °C}$ als irreversibel angesehen werden [29]. Als exotherme Nebenreaktionen treten die reversible Wassergas-Shiftreaktion (2.6) und die reversible Methanisierungsreaktion (2.7) auf. Ein weiterer Komplex von Nebenreaktionen, welcher die Boudouard-Reaktion, die Methanaufspaltung und die CO- und CO₂-Hydrierung umfasst, führt zu Rußbildung und muss daher unterdrückt werden. Die Reaktionen (2.5) bis (2.7) sind in ihrer Summe bei der Erzeugung von CH₄-armen Gasgemischen endotherm, so dass der Reaktor extern beheizt werden muss.



Abbildung 2.3 zeigt die Temperaturabhängigkeit der Produktzusammensetzung bei der beheizten Dampfreformierung (2.5) von Dieseldieselkraftstoff im chemischen Gleichgewicht, inklusive der beiden Nebenreaktionen (2.6) und (2.7). Die Dampfreformierung weist eine große spezifische H₂-Ausbeute bezogen auf den Kohlenwasserstoffeinsatz auf. Pro umgesetztem mol C_nH_m entstehen $(n + m/2)$ mol Wasserstoff in der Reformierung sowie eine zusätzliche Molmenge H₂ in der parallel ablaufenden Shiftreaktion. Die Wasserstoffkonzentration im Produktgas liegt für den in Abbildung 2.3 dargestellten Fall (Diesel, 1 bar, $n(H_2O)/n(C) = 1,5$) ab einer Temperatur von 700 °C bei etwa 60 %. Die CO-Konzentration liegt in diesem Bereich über 20 %. Die maximale H₂-Ausbeute wird bei einer Temperatur von etwa 800 °C erreicht.

Die CO-Methanisierungsreaktion entspricht der umgekehrten Dampfreformierung von Methan. Bei der Methanisierung verschiebt sich das Gleichgewicht nach dem Prinzip von Le Chatelier bei steigender Temperatur oder sinkenden Drücken hin zu den Edukten CO und H₂. Wie Abbildung 2.3 zeigt, kann so durch hohe Temperaturen die unerwünschte Bildung von Methan unterdrückt werden. Eine Erhöhung des Verhältnisses aus zugeführter Wasserdampfmenge zur Kohlenstoffmenge ($n(H_2O)/n(C)$) im Kraftstoff bewirkt, wie der in Abbildung 2.4 dargestellte Gleichgewichtszustand zeigt, ebenfalls eine Abnahme des Methangehalts. Durch die mit steigendem Dampfgehalt zunehmende Wasserstoffproduktion der Shiftreaktion und der entgegengesetzt wirkenden Verdünnung des Gasgemischs durch zusätzliches Wasser bildet sich ein

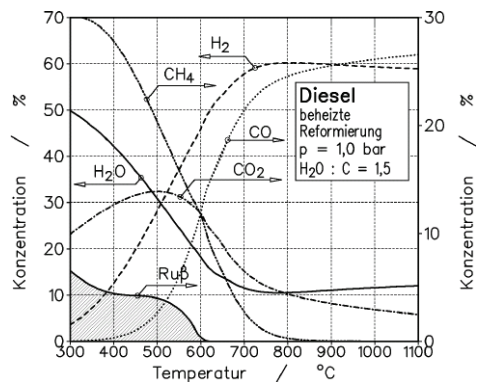


Abb. 2.3: Temperaturabhängigkeit der Produktzusammensetzung bei der beheizten Dampfreformierung von Dieseldieselkraftstoff [30]

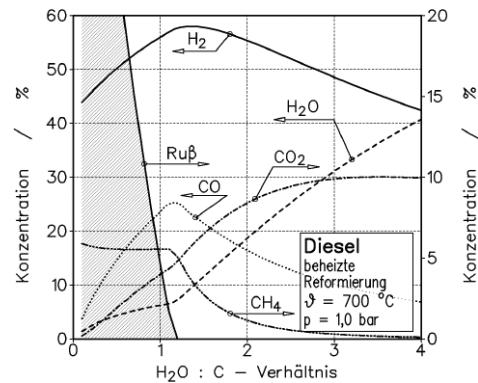


Abb. 2.4: Zusammensetzung des Produkts der beheizten Dampfreformierung von Dieseldieselkraftstoff in Abhängigkeit vom $n(H_2O)/n(C)$ -Verhältnis [30]

Maximum der Wasserstoffkonzentration im Produktgas bei einem $n(H_2O)/n(C)$ -Verhältnis von etwa 1,3. Aus den Abbildungen 2.3 und 2.4 lässt sich die für die maximale Wasserstoffausbeute ideale Betriebsbedingung von $TR = 800\text{ °C}$ bei einem $n(H_2O)/n(C)$ -Verhältnis von 1,3 herleiten. In diesem Punkt ist die H_2 Ausbeute maximal, bei einer Methankonzentration über 1 % und einer Kohlenstoffmonoxidkonzentration von etwa 25 %. Steigt der Dampfanteil bis zu einem $n(H_2O)/n(C)$ -Verhältnis von 2, kommt es nur zu einer geringen Abnahme der H_2 -Konzentration auf 58 % bis 55 %, wobei gleichzeitig die CO -Konzentration um etwa 10 % sinkt. Niedrige Temperaturen von $TR < 600\text{ °C}$ und ein Dampf zu Kohlenstoff Verhältnis kleiner als 1,2 können zur Rußbildung führen und sollten daher unbedingt vermieden werden.

Partielle Oxidation

Die partielle Oxidation (*partial oxidation*, POX) ist eine unterstöchiometrische Umsetzung von Kohlenwasserstoffen mit Sauerstoff oder Luft zu Synthesegas (2.8):



Als unerwünschte Nebenreaktionen können bei Sauerstoffüberschuss die vollständige Oxidation des Kohlenstoffs und des Wasserstoffs, sowie die Methanisierungsreaktion (2.7) auftreten. Ebenso wie bei der Dampfreformierung müssen rußbildende Nebenreaktionen unterdrückt werden. Die partielle Oxidation weist eine im Vergleich zur Dampfreformierung geringere spezifische H_2 -Ausbeute bezogen auf den Kohlenwasserstoffeinsatz auf. Pro umgesetztem mol C_nH_m entstehen $(m/2)$ mol Wasserstoff aus der Reformierung im Vergleich zu $(n + m/2)$ mol Wasserstoff bei reiner Dampfreformierung. Durch den stark exothermen Charakter der partiellen Oxidation wird keine externe Heizung benötigt. Abbildung 2.5 zeigt die Zusammensetzung

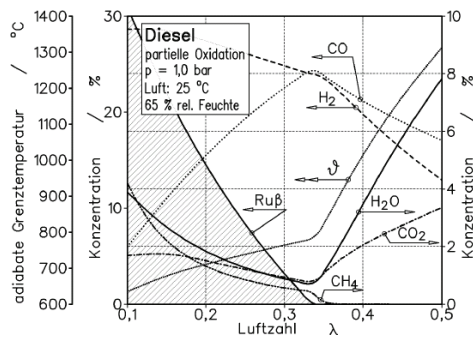


Abb. 2.5: Partielle Oxidation von Dieseldieselkraftstoff, Produktzusammensetzung in Abhängigkeit von der Luftzahl λ [30]

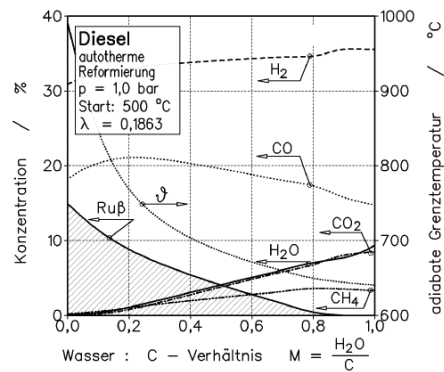


Abb. 2.6: Autotherme Reformierung von Dieseldieselkraftstoff mit Wasserdampf, Start bei 500 °C, Produktzusammensetzung in Abhängigkeit von der zugeführten Wassermenge [30]

des Produktes der partiellen Oxidation von Dieseldieselkraftstoff im chemischen Gleichgewicht als Funktion der dem Reaktor zugeführten Luftmenge. Ab einer Luftzahl von etwa 0,34 ist die Rußbildung zu vernachlässigen und die Methankonzentration im Produkt liegt unter 1 %. Die Kohlenmonoxidkonzentration hat in diesem Punkt ihr Maximum. Mit steigenden Luftzahlen kommt es verstärkt zur Totaloxidation von CO und Wasserstoff, wodurch die H_2 - und CO -Konzentrationen im Produktgas absinken.

Autotherme Reformierung

Die autotherme Reformierung ist die energieautarke Kombination der beiden vorgestellten Reformierungsprozesse Dampfreformierung und partielle Oxidation. Als Edukte werden neben dem Kohlenwasserstoff sowohl Wasser für eine Dampfreformierung, als auch Sauerstoff bzw. Luft für eine partielle Oxidation zugeführt. Mit Hilfe eines geeigneten $n(O_2)/n(C)$ -Verhältnisses lässt sich das System so austarieren, dass die in der partiellen Oxidation freigesetzte Wärme den Wärmebedarf der endothermen Dampfreformierungsreaktion deckt. Die autotherme Reformierung vereint die Vorteile der partiellen Oxidation, wie das einfache Reaktordesign und das gute dynamische Verhalten, mit einem hohen Wirkungsgrad aus der Dampfreformierung [31]. Abbildung 2.6 zeigt die Reformatzusammensetzung und die adiabate Grenztemperatur im chemischen Gleichgewicht in Abhängigkeit vom $n(H_2O)/n(C)$ -Verhältnis im Eduktgas. Im Vergleich mit der Produktzusammensetzung der Dampfreformierung in Abbildung 2.4 zeigt sich die grundsätzlich geringere Neigung zur Bildung von Kohlenstoffablagerungen. Dabei nimmt die Neigung zur Bildung von Kohlenstoff sowohl mit zunehmendem $n(H_2O)/n(C)$ -Verhältnis, als auch mit zunehmendem $n(O_2)/n(C)$ -Verhältnis, ab. Für die am IEK-3 entwickelten autothermen Reformer wurde ein $n(H_2O)/n(C)$ -Verhältnis von 1,9 und ein $n(O_2)/n(C)$ -Verhältnis von 0,47

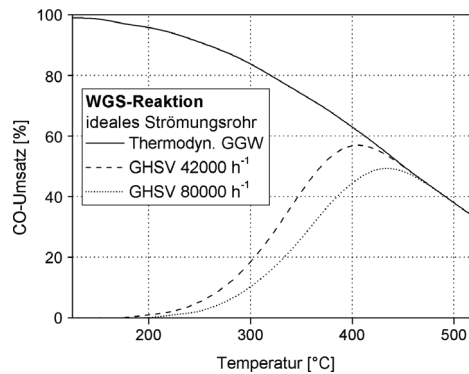


Abb. 2.7: Gleichgewichtslage und angepasste S-Kurven für ein ideales Strömungsrohr bei unterschiedlichen Raumgeschwindigkeiten /GHSV) in Abhängigkeit von der Temperatur (nach [33])

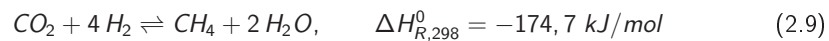
als optimaler Betriebspunkt ermittelt [32]. Das in diesem Betriebspunkt entstehende Reformat enthält etwa 30 % Wasserstoff sowie Stickstoff, Wasser, Kohlendioxid, Kohlenmonoxid und Methan.

Wassergas-Shift-Reaktion

Das Reformat der autothermen Reformierung enthält einen Anteil von etwa 8,6 Vol.-% - 10,6 Vol.-% des Katalysatorgiftes CO, welches nur in einer Konzentration unter 1 % im Anodenfeedgas der HT-PEFC enthalten sein darf [32]. Da eine Abtrennung aus dem Reformatstrom verfahrenstechnisch aufwändig ist, wird das Kohlenmonoxid in der Wassergas-Shiftreaktion zu Kohlendioxid umgesetzt (2.6), welches sich im weiteren Verlauf inert verhält. Anders als bei der CO-Oxidation entsteht bei der Shift-Reaktion zusätzlicher Wasserstoff, wodurch sich der Wirkungsgrad der Brenngaserzeugung weiter erhöht.

Abbildung 2.7 zeigt den CO-Umsatz im Gleichgewicht in Abhängigkeit von der Temperatur, sowie die angepassten S-Kurven für ein ideales Strömungsrohr bei exemplarischen Raumgeschwindigkeiten (GHSV). Bei Temperaturen unter 150 °C wird das Kohlenmonoxid in einem Gleichgewichtsprozess nahezu vollständig umgesetzt. Aufgrund der langsamen Reaktionskinetik in diesem Temperaturbereich wird das Gleichgewicht im idealen Strömungsrohr jedoch nur bei sehr geringer GHSV erreicht, welche für technische Anwendungen aber nicht praktikabel ist. Daher wird die Shiftreaktion in einem Zweistufenkonzept realisiert. Die erste Hochtemperaturstufe (HTS) wird idealerweise bei der Temperatur des maximalen CO-Umsatzes bei vorgegebener GHSV betrieben (400 °C bei GHSV 42000 h⁻¹, 425 °C bei GHSV 60000 h⁻¹). In typischen technischen Anwendungen wird im Hochtemperatur-Shiftreaktor die CO-Konzentration bei 300 °C - 450 °C von etwa 10 Vol.-% auf 3 Vol.-% reduziert. Zwischen der HT- und der Niedertemperaturstufe der Shiftreaktion wird das heiße Reformat mit Wasser abgekühlt. Durch den Entzug der Verdampfungsenthalpie wird die Gastemperatur in den Bereich der NT-Shiftreaktion gesenkt und gleichzeitig Wasser zur weiteren CO-Konvertierung bereitgestellt.

In der Niedertemperaturstufe (NTS) wird die günstigere Lage des Gleichgewichts genutzt, um die CO-Konzentrationen weiter zu senken. Aufgrund der langsameren Reaktionskinetik werden NT-Shiftreaktoren in der Regel bei geringeren Raumgeschwindigkeiten betrieben. Dabei wird die CO-Konzentration im zweiten Schritt bei Temperaturen zwischen 180 °C und 270 °C weiter in den Bereich von 0,6 Vol.-% - 1,0 Vol.-% gesenkt. In den Shiftreaktoren treten dabei unerwünschte Nebenreaktionen auf, in denen Wasserstoff mit Kohlenmonoxid (2.7) bzw. mit Kohlendioxid (2.9) zu Methan und Wasser reagiert. Aus den unerwünschten Nebenreaktionen resultiert ein weiterer Verbrauch von Wasserstoff. Zur Erhöhung der H₂-Ausbeute der Brenngaserzeugung ist in den Shift-Reaktoren eine selektive Reaktionsgestaltung zu Gunsten der Shift-Reaktion erforderlich [34].



Nach der Shiftreaktion enthält das Reformat etwa 30 % H₂ und unter 1 % CO, sowie die in der HT-PEFC inerten Komponenten CO₂, H₂O und CH₄. Damit werden die unter 2.1.1 definierten Anforderungen an die Zusammensetzung des Anodenfeedgases erfüllt.

Katalytische Verbrennung

Da der Wasserstoff in der Brennstoffzelle nicht zu 100% umgesetzt wird, enthält das Anodenabgas einen Rest an H₂. Zusätzlich befinden sich im austretenden Gasstrom das im Reformier und in den Shift-Reaktoren gebildete Methan, sowie das in der Shiftreaktion nicht umgesetzte Kohlenmonoxid. Diese Komponenten des Anodenabgases werden in einem katalytischen Nachbrenner gemäß den Reaktionsgleichungen (2.10) bis (2.12) thermisch verwertet. Dazu wird das Anodenabgas nach Austritt aus der HT-PEFC mit frischer Luft gemischt. Die bei der katalytischen Verbrennung entstehende Wärme wird im System zur Verdampfung eines Teils des im Reformier benötigten Wassers verwendet. Gleichzeitig wird durch die Verbrennung die Emission von Methan in die Atmosphäre verhindert und der aus dem Abgas zu gewinnende Wassermassenstrom erhöht.



2.1.3 Kinetik katalytischer Oberflächenreaktionen

Im Brenngaserzeugungssystem ist außer der Thermodynamik der ablaufenden chemischen Reaktionen auch deren Kinetik von entscheidender Bedeutung. Die Reaktionskinetik bestimmt die Raumgeschwindigkeit und damit schließlich die Größe der Reaktoren. Ebenso bestimmt die Reaktionskinetik das Temperaturprofil in den Reaktionszonen und somit das Wärmemanagement innerhalb der Reaktoren und der integrierten Komponenten. In den Verfahrensschritten der Brenngaserzeugung laufen zwei verschiedene Reaktionsarten ab:

1. Die Kernreaktionen des Brenngaserzeugungssystems, die autotherme Reformierung, die Shift-Reaktionen und die katalytische Verbrennung laufen als heterogen katalysierte Oberflächenreaktionen ab. Der Katalysator ist hierbei auf einer wabenförmigen monolithischen Trägerkeramik aufgebracht, welche von den Reaktanden durchströmt wird.
2. Vorreaktionen, wie die kalten Flammen, laufen ohne Katalysator homogen im Reaktionsvolumen ab.

Homogene Gasphasenreaktionen

Die allgemeine Form einer Reaktion r ist:



Hierbei sind $\nu'_{i,r}$ und $\nu''_{i,r}$ die stöchiometrischen Koeffizienten der Edukte bzw. der Produkte und $k_{f,r}$ und $k_{b,r}$ sind die Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten der Hin- bzw. der Rückreaktion. M_i repräsentiert die Komponente i . Die Kinetik der Reaktion r wird durch die molare Reaktionsgeschwindigkeit R beschrieben. Dabei ist R_i die Geschwindigkeit mit der n Mol einer Komponente i in einem vorgegebenen Reaktionsvolumen V_R reagieren:

$$R_i = \frac{dC_i}{dt} = \frac{1}{V_R} \frac{dn_i}{dt} = \nu_i \cdot R \quad (2.14)$$

Für die allgemeine Reaktionsgeschwindigkeit einer Gleichgewichtsreaktion gilt:

$$R = k_{f,r}(T) \cdot \prod C_{i,r}^{\eta'_{i,r}} - k_{b,r}(T) \prod C_{i,r}^{\eta''_{i,r},P} \quad (2.15)$$

Dabei ist $C_{i,r}$ die molare Konzentration der Komponente i in der Reaktion und $\eta_{i,r}$ ist der Exponent der Reaktionsordnung für Hin- und Rückreaktion. Für eine reine Elementarreaktion entsprechen die Exponenten der Reaktionsordnung dem Produkt der jeweiligen stöchiometrischen Koeffizienten. Im Falle einer reinen Hinreaktion entfällt der Term der Rückreaktion. Die Temperaturabhängigkeit der Geschwindigkeitskonstante wird durch den Ansatz von Arrhenius beschrieben:

$$k_{f,r} = A_r T^\beta e^{-\frac{E_{a,r}}{RT}}. \quad (2.16)$$

Hierbei ist $E_{a,r}$ die Aktivierungsenergie der Reaktion, A_r ein Proportionalitätsfaktor (*pre-exponential factor*) und β beschreibt eine zusätzliche, nicht exponentielle Abhängigkeit von der Temperatur.

Heterogene katalytische Reaktionen

Die Reaktionszone der Reaktoren der Brenngaserzeugung besteht aus einem wabenförmigen, mit einem Katalysator beschichteten Monolithen. Die Reaktionen finden nicht homogen im Volumen sondern heterogen an der katalytischen Oberfläche statt. Der Katalysator senkt die Aktivierungsenergie der gewünschten Reaktion, wodurch sich die Reaktionsgeschwindigkeit nach

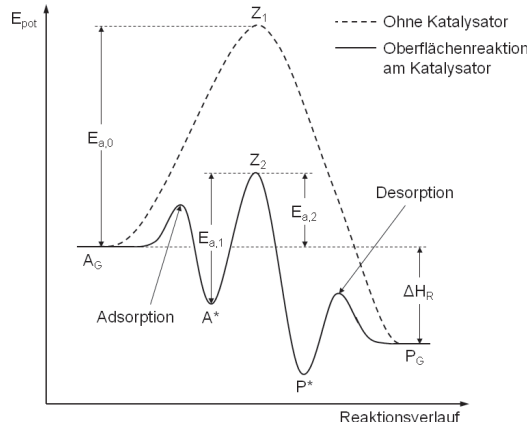


Abb. 2.8: Reaktionsverlauf einer katalytischen Oberflächenreaktion im Vergleich zur Reaktion ohne Katalysator [35]

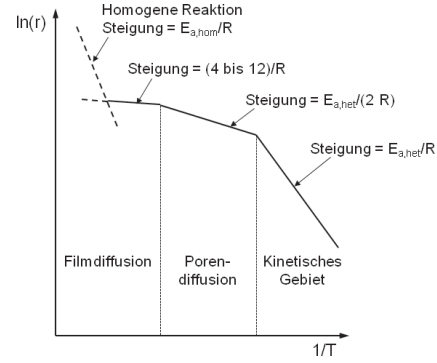


Abb. 2.9: Einfluss der Temperatur auf die Reaktionsgeschwindigkeit [36]

Gleichung (2.16) erhöht. Somit beeinflusst der Katalysator die Kinetik der Reaktionen, wohingegen die Thermodynamik unberührt bleibt. Die Gleichgewichtslage ändert sich nicht. Abbildung 2.8 zeigt den Reaktionsverlauf einer katalytischen Oberflächenreaktion. Die gasförmigen Edukte A_G adsorbieren aus der Gasphase an der Oberfläche und bilden die Oberflächenspecies A^* . Bei Bereitstellung der Aktivierungsenergie $E_{a,1}$ reagieren die Oberflächenspecies katalytisch zu den ebenfalls adsorbierten Produkten P^* . Abschließend desorbieren die Produkte P_G und treten in die Gasphase ein. $E_{a,0}$ ist hierbei die Aktivierungsenergie der nicht-katalytischen Reaktion und $E_{a,2}$ beschreibt die scheinbare Aktivierungsenergie der katalytischen Reaktion. Die Reaktionsgeschwindigkeit des Gesamtprozesses ist durch die jeweiligen Geschwindigkeiten der Teilprozesse limitiert. Die resultierende Reaktionsgeschwindigkeit k_{ges} berechnet sich gemäß Gleichung (2.17) aus einem diffusiven Stoffstrom durch die Grenzschicht $k_g S_{ext}$, der Transportgeschwindigkeit der internen Diffusion $k_s S_{int} \eta_{Kat}$, der Adsorptionsrate k_{ads} und schließlich der Geschwindigkeit der Oberflächenreaktion k_s . Hierbei beschreibt der Effektivitätsfaktor η_{Kat} den Einfluss der Stoff- und Wärmetransportlimitierung in der Porenstruktur des Katalysators.

$$k_{ges} = \frac{1}{\frac{1}{k_g S_{ext}} + \frac{1}{k_s S_{int} \eta_{Kat}} + \frac{1}{k_{ads}} + \frac{1}{k_s A_{int}}} \quad (2.17)$$

Abbildung 2.9 zeigt den Verlauf der Reaktionskinetik und die jeweiligen limitierenden Faktoren als Funktion der Temperatur. Bei niedrigen Temperaturen ist die Reaktionskinetik k_s der limitierende Faktor der Oberflächenreaktion. Mit steigenden Temperaturen erhöht sich die Reaktionsgeschwindigkeit, so dass die Geschwindigkeit der Gesamtreaktion erst durch die Diffusion der Reaktanden in die Poren des Katalysatorträgers $k_s S_{int}$ und mit weiter steigender Temperatur durch den Transport der Reaktanden an den Katalysator $k_g S_{ext}$ limitiert wird. Überschreitet die Temperatur ein reaktionspezifisches Niveau, ist die Bewegungsenergie der

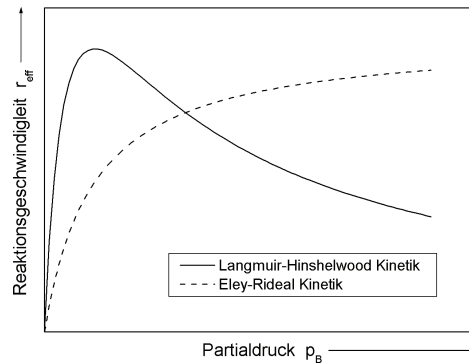


Abb. 2.10: Reaktionsgeschwindigkeit katalytischer Oberflächenreaktionen nach Langmuir-Hinshelwood und Eley-Rideal [35]

Eduktmoleküle für das Einsetzen einer Gasphasenreaktion ausreichend. Mit weiter steigender Temperatur nimmt der Anteil der homogenen Gasphasenreaktionen am Umsatz zu, so dass der katalytische Prozess allmählich in eine homogene Reaktion übergeht [29].

Die genauen Mechanismen katalytischer Oberflächenreaktionen sind komplex und nicht immer vollständig bekannt. Zur Beschreibung von bimolekularen Reaktionen der zwei Edukte A und B zum Produkt P werden drei unterschiedliche Ansätze verwendet. Diese unterscheiden sich in der Art des Adsorptionsverhaltens der Reaktanden. Nach den kinetischen Daten laufen sowohl die autotherme Reformierung als auch die Shift-Reaktionen und die katalytische Verbrennung nach einem Langmuir-Hinshelwood Mechanismus ab. Der Langmuir-Hinshelwood Ansatz basiert auf der Annahme, dass in einem ersten Schritt beide Edukte adsorbiert werden. Die chemisorbierten Edukte A^* und B^* reagieren anschließend zum ebenfalls chemisorbierten Produkt P^* , welches abschließend desorbiert. Für die effektive Reaktionsgeschwindigkeit R_{eff} ergibt sich hieraus:

$$R_{eff} = \frac{dp_c}{dt} = k \frac{K_A p_A K_B p_B}{(1 + K_A p_A + K_B p_B)^2} = k \theta_A \theta_B. \quad (2.18)$$

Der Bedeckungsgrad θ ist hierbei als Quotient aus der Anzahl aktiver Zentren und der noch vorhandenen freien Stellen auf der Oberfläche definiert. Abbildung 2.10 zeigt die sich daraus ergebende Abhängigkeit der Reaktionsgeschwindigkeit vom Partialdruck. Die Reaktionsgeschwindigkeit nach Langmuir-Hinshelwood zeigt drei charakteristische Bereiche. Niedrige Partialdrücke führen zu kleinen Bedeckungsgraden. Die Umsetzung der chemisorbierten Moleküle ist nicht gehindert, somit ergibt sich ein nahezu proportionaler Anstieg der effektiven Reaktionsgeschwindigkeit mit dem Partialdruck. Im Maximum der effektiven Reaktionsgeschwindigkeit ist die Oberfläche jeweils zur Hälfte mit den Reaktanden A und B besetzt. Mit weiter zunehmendem Partialdruck ist die Oberfläche überwiegend von der Komponente A bedeckt, so dass die eigentliche Reaktion der chemisorbierten Moleküle A und B nur eingeschränkt stattfinden kann.

2.1.4 Einfluss der Kraftstoffzusammensetzung

Das am IEK-3 entwickelte Brenngaserzeugungssystem ist für die Verwendung von Mitteldestillaten und entsprechender synthetischer Kraftstoffe ausgelegt. Dabei haben die unterschiedlichen Kraftstoffe und Kraftstoffzusammensetzungen großen Einfluss auf die Leistung und das Betriebsverhalten des Systems [37]. Tabelle 2.1 gibt einen Überblick über die Stoffeigenschaften der Mitteldestillate Kerosin, Diesel und Heizöl. Diesel und Kerosin verfügen über ähnliche Eigenschaften und unterscheiden sich hauptsächlich durch die niedrigere Verdampfungstemperatur, die geringere Viskosität und den in der Regel höheren Schwefelgehalt des Kerosins. Das mittlere Mengenverhältnis von Wasserstoff- und Kohlenstoffatomen im Kraftstoff bestimmt direkt die Produktzusammensetzung des Reformats. Ein niedriges H/C -Verhältnis führt zu einer hohen Kohlenstoffmonoxidkonzentration im Reformat, wodurch sich ein gesteigerter Aufwand der Brenngasnachbehandlung ergibt. Gleichzeitig steigt die Wasserstoffkonzentration im Reformat und somit die Wasserstoffausbeute der Reformierung mit zunehmendem H/C -Verhältnis des jeweiligen Kraftstoffs, also in der Reihenfolge Superbenzin, Naphtha, Normalbenzin, Diesel und synthetisches Naphtha. Die Reformierbarkeit und die Reformierungskinetik wird durch die Art der chemischen Verbindungen im Kraftstoff beeinflusst. Die Reformierungskinetik bestimmt wiederum die erforderlichen Temperaturen und die Verweilzeiten im autothermen Reformier. Kraftstoffe lassen sich bis zu einem maximalen Schwefelgehalt von 12 ppm ohne Schädigung des Katalysators reformieren [32]. Bei einem Schwefelgehalt von 10 ppm im Kraftstoff liegt die Konzentration der Schwefelwasserstoffe im erzeugte Brenngas bei etwa 1 ppm und damit unterhalb der Toleranzgrenze einer HT-PEFC [19]. Generell ist die Reformierung von Aromaten problematisch, da die stabile Ringstruktur der aromatischen Kohlenwasserstoffmoleküle im Temperaturbereich der autothermen Reformierung nur schwer aufgebrochen werden kann. Mit steigendem Aromatengehalt im Kraftstoff sinkt somit der Kohlenwasserstoffumsatz. Dieser Effekt zeigt sich besonders bei niedrigen $n(O_2)/n(C)$ -Verhältnissen. Generell steigt mit hohen Aromatenanteilen die Neigung zur Verkokung. Neben dem Mengenanteil der Aromaten beeinflusst auch die Art der aromatischen Verbindungen die Reformierbarkeit des Kraftstoffs. Als weitere, bei der Reaktorauslegung wichtige Stoffgröße beeinflusst der Heizwert des Kraftstoffs direkt das Wärmemanagement des Systems. Die Übersicht in Tabelle 2.1 zeigt, dass Kerosin und Diesel ein annähernd gleiches H/C -Verhältnis aufweisen. Diesel enthält weniger Aromaten als Benzin, hat jedoch aufgrund des höheren Siedebereichs bis 390 °C einen größeren Anteil an schwerer zu reformierenden polyzyklischen Aromaten.

2.2 Wärmeintegriertes Brenngaserzeugungssystem

2.2.1 Integration der Verdampfer und Wärmetauscherkomponenten

Aus den diskutierten thermodynamischen Eigenschaften der Brenngaserzeugungsreaktionen leiten sich weitere interne Anforderungen an das Brenngaserzeugungssystem ab:

Tabelle 2.1: Spezifikationen für Kerosin (Jet A-1) und Diesel

		Kerosin Jet A-1 [38]	Diesel [39]	Ottokraftstoff [40]
Zusammensetzung				
<i>H/C</i> -Verhältnis	-	≈ 1,9 [37]	1,8 - 1,9	1,81 - 1,95
Aromatengehalt	% (Vol.)	max. 25		max. 42
polyzykl. Aromaten	% (Masse)		max. 11	
Schwefelgehalt	% (Masse)	max. 0,3	max 0,005	max. 0,01
Siedebereich				
Starttemperatur	°C	150	170	25
Endtemperatur	°C	300	390	210
Dichte				
bei 15 °C	kg/m ³	775 - 840	820 - 845	720 - 775
Heizwert	MJ/kg	42,8	42,6	42,5

1. Die autotherme Reformierung erfordert zur Bereitstellung der Edukte ein Dampferzeugungssystem sowie eine Luftvorwärmung.
2. Die Wassergas-Shiftreaktoren benötigen eine Wasserversorgung zum Quenchen zwischen der Hochtemperatur- und der Niedertemperaturstufe.
3. Nach den in Abschnitt 2.1.1 definierten Grundanforderungen muss der heiße Dampf und die heiße Luft intern vom Brenngaserzeugungssystem zur Verfügung gestellt werden. Dies erfordert eine Wärmerückgewinnung im System, sowie eine sinnvolle Verschaltung und Integration der Dampferzeugung bezüglich der Reaktorrandbedingungen.
4. Das Brenngaserzeugungssystem soll wasserautark betrieben werden. Somit muss das für die Dampferzeugung und das Quenchen benötigte Wasser mittels Kondensation aus den Abgasen des Systems zurückgewonnen und dem Wasserkreislauf zugeführt werden.

Die Wärmebilanz der einzelnen Komponenten erlaubt eine effektive Wärmerückgewinnung an zwei Stellen im Brenngaserzeugungssystem [41]:

1. Zwischen dem autothermen Reformer (ATR), den das Reformat mit etwa 750 °C verlässt, und dem Hochtemperatur-Shiftreaktor, in den das Reformat mit 400 °C eintritt.
2. Im katalytischen Brenner (CAB), in dem die im Anodenrestgas enthaltenen Brennstoffreste, zur Energierückgewinnung, umgesetzt werden.

Bei der thermischen Verwertung des Anodenabgas im katalytischen Brenner entsteht ein 700 °C heißes Gasgemisch welches zur Dampfproduktion verwendet werden soll. Dem Dampfkreislauf wird als Ausgangsstoff Wasser mit einer Temperatur von 15 °C zugeführt.

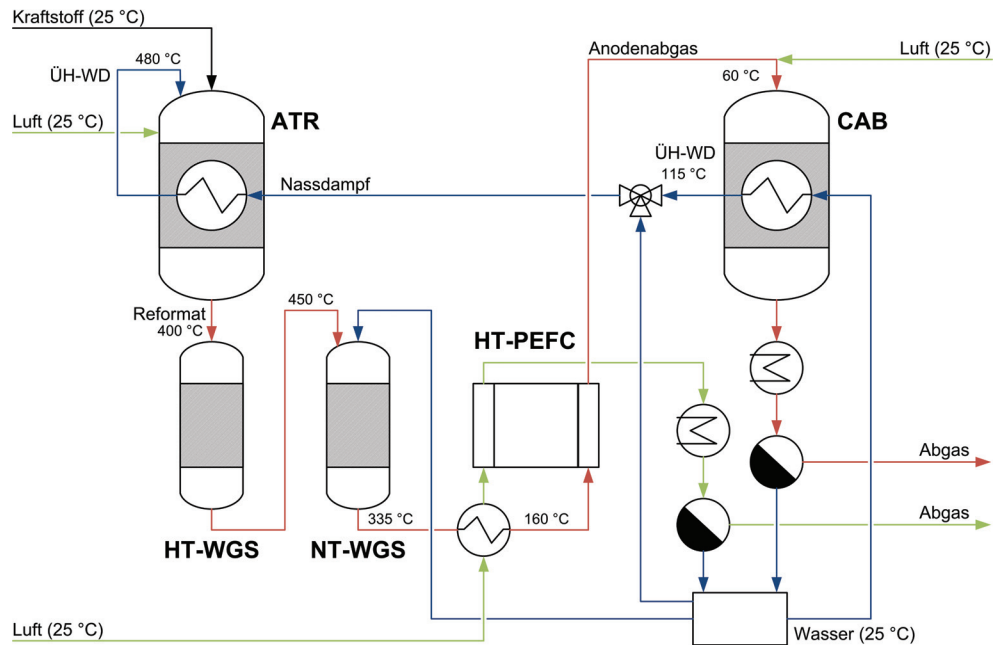


Abb. 2.11: BGS HT-PEFC Verfahrensfließbild

Aufgrund der angestrebten integrierten Bauweise ist der Verdampfer ein Bestandteil des Reformers. Der Verdampferauslass mündet direkt in die Mischkammer des Reformers, so dass er den kompletten für die Reformierung benötigten überhitzten Dampf zur Verfügung stellen muss. Es ist daher nicht möglich, in jedem Verdampfer nur einen Teil des überhitzten Dampfes herzustellen und diese Anteile dann vor dem Reformer zusammenzuführen. Das Wasser muss im Verdampfer des katalytischen Brenners partiell verdampft werden, um dann im integrierten Verdampfer des Reformers vollständig verdampft und überhitzt zu werden. Dies erfordert am Eintritt des Reformer-Verdampfers Wasserdampf mit einem definierten Dampfgehalt. Da Wasserverdampfer in der Regel nur gesättigten oder leicht überhitzten Wasserdampf liefern, ist die Umsetzung eines solchen definierten Dampfgehalts regelungstechnisch und verfahrenstechnisch kaum realisierbar. Daher wird in dem im IEK-3 verwendeten Dampferzeugungssystem ein anderer Ansatz verfolgt. Im Verdampfer des katalytischen Brenners wird nur ein Teil des kalten Wassers verdampft und leicht überhitzt. Dieser überhitzte Dampf wird vor dem Eintritt in den Verdampfer des Reformers mit dem restlichen kalten Wasser gemischt, so dass Nassdampf mit einem Dampfgehalt gemäß dem Aufteilungsverhältnis entsteht. Es ergibt sich das in Abbildung 2.11 dargestellte Dampferzeugungssystem. Das Aufteilungsverhältnis ergibt sich aus der Wärmebilanz des Wasserverdampfers im Reformer. Für den in den autothermen Reformer integrierten Verdampfer sind der zur Verfügung stehende Wärmestrom und die Dampfeigenschaften am Austritt genau festgelegt. Der Verdampfer im katalytischen Brenner besitzt einen

Freiheitsgrad mehr, da die Eigenschaften am Abgasaustritt nicht näher festgesetzt sind. Die Regelung von Abweichungen im System kann also nur über das Aufteilungsverhältnis und den Verdampfer des katalytischen Brenners erfolgen.

2.2.2 Reaktoren der Brenngaserzeugung

Die designbestimmenden Elemente der Reaktoren der Brenngaserzeugung sind die monolithischen Katalysatorträger. Die zylindrische Grundform der Reaktoren sowie die Reaktorabmessungen werden durch die Monolithe vorgegeben. Die Größe der Monolithe wird mit der GHSV bestimmt. Dabei gilt als Ähnlichkeitstheoretischer Richtwert für die Monolithproportionen ein Längen- zu Durchmesser Verhältnis von etwa 2. Die Feinheit der Wabenstruktur beträgt bei der autothermen Reformierung 600 cpsi und bei der katalytischen Verbrennung sowie den Shiftreaktionen 400 cpsi.

Abbildung 2.12 zeigt die grundlegenden Designkonzepte der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung: den autothermen Reformier, den katalytischen Brenner und die Shiftreaktoren. Der autotherme Reformier besteht aus einer Mischkammer, einer monolithischen Reaktionszone und einem integrierten Wärmetauscher. In der Mischkammer wird der Kraftstoff verdampft und ein homogenes Eduktgemisch erzeugt. In der Reaktionszone werden kurz hinter dem Eintritt aufgrund der schnellen Kinetik der POX, Temperaturen von bis zu 1000 °C erreicht. Im weiteren Verlauf dominiert die endotherme Dampfreformierung, so dass sich die Reformattemperatur bis zum Austritt auf etwa 750 °C abkühlt. Der integrierte Verdampfer dient zur Bereitstellung des für die autotherme Reformierung benötigten überhitzten Wasserdampfs. In den aktuellen Reformern wird das Wasser in einer Rohrwendel, welche vom umgelenkten heißen Reformat umströmt wird, verdampft. Da am Verdampfereintritt bereits Nassdampf mit einem Dampfgehalt von etwa 50 % vorliegt, treten in der Rohrwendel keine strömungsbedingten Druckpulsationen auf. Im Rahmen dieser Arbeit soll der Rohrwendelwärmetauscher durch einen Ringspaltwärmetauscher ersetzt werden. Im katalytischen Brenner wird das Anodenabgas vor der katalytischen Verbrennung homogen über den Querschnitt der monolithischen Reaktionszone verteilt. Der in den katalytischen Brenner integrierte Verdampfer ist als Ringspalt um die Reaktionszone herum konstruiert. Am Verdampfereintritt liegt flüssiges Wasser vor, so dass die Gefahr von Strömungspulsationen besteht. Als Lösung dieses Problems wird Wasser auf eine heiße Wärmetauschoberfläche aufgesprüht, wo es teilweise verdampft. Der entstehende Wasserdampf dient im weiteren Strömungsverlauf des Wärmetauschers als Trägergas für das restliche flüssige Wasser. In den Ringspalten des ATR und des CAB sind Drahtgestricke als Strömungskörper zur Verbesserung des Wärmeübergangs angebracht. Der Shiftreaktor ist in eine Hochtemperatur- und eine Niedertemperaturstufe unterteilt. Zwischen den beiden Stufen wird das heiße Gas gequenchet. Dazu wird am Eintritt der Niedertemperaturstufe Wasser in den heißen Gasstrom eingesprüht.

2.2.3 Einspritzsysteme

In den Reaktoren der Brenngaserzeugung wird Kerosin zur Verdampfung in die Mischkammer des ATR und Wasser zur Verdampfung in den integrierten Wärmetauscher des CAB

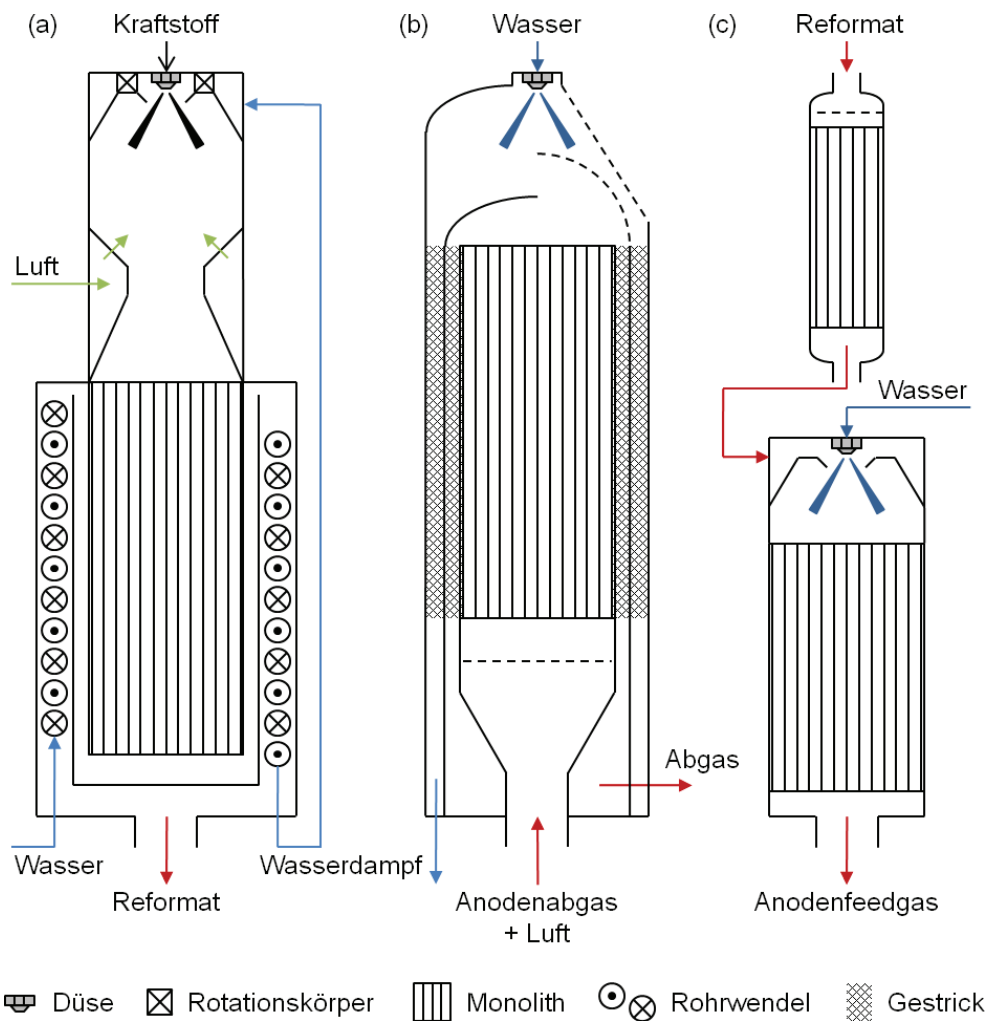


Abb. 2.12: Schematische Darstellung der Reaktoren der Brenngaserzeugung,
(a) Autothermer Reformer, (b) Katalytischer Brenner, (c) Shiftreaktoren

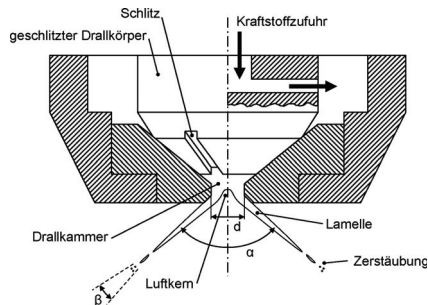


Abb. 2.13: Funktionsprinzip einer Dralldruckdüse [42]

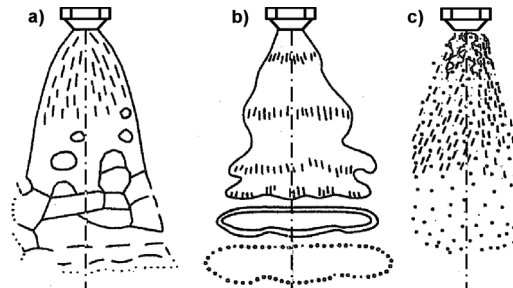


Abb. 2.14: Zerfallsmechanismen beim Lamellenzerfall [43] a) Randwulst Kontraktion; b) Aerodynamisches Zerwellen; c) Turbulenter Lamellenzerfall

eingespritzt. Die Hauptanforderungen an die Einspritzsysteme sind eine möglichst feine Zerstäubung der Fluide um eine schnelle und vollständige Verdampfung zu gewährleisten, sowie die Modulierbarkeit des Systems in einem breiten Leistungsbereich von 25 % bis 120 % zu realisieren.

Als Einspritzsysteme werden in den Reaktoren der Brenngaserzeugung Dralldruckdüsen eingesetzt. Dralldruckdüsen gehören zu den lamellenbildenden Einstoff-Druckdüsen. Das Fluid wird in der verwendeten und in Abbildung 2.13 schematisch dargestellten axialen Bauweise der Düse unter Druck durch tangentielle Schlitze in eine Umlaufkammer geführt. Hier bildet sich ein Drall aus, der die Druckenergie in Rotationsenergie umsetzt. Am Austritt der Rotationskammer entsteht eine rotierende Flüssigkeitslamelle, welche als Hohlkegel durch die Düsenöffnung austritt. Eine wichtige Kennzahl zur Beschreibung von Zerstäubungsprozessen ist die Weberzahl, welche als das Verhältnis der Trägheitskräfte zu den Oberflächenkräften eines Tropfens definiert ist. Bei den in technischen Dralldruckdüsen auftretenden hohen Weberzahlen von $We \gg 1640$ kommt es zum turbulenten Lamellenzerfall in unmittelbarer Düsennähe wie Abbildung 2.14 c zeigt. Die kinetische Energie überwindet die Oberflächenspannung des Films, so dass dieser in eine Vielzahl feiner Tropfen zerfällt. Das Sprühbild zeichnet sich durch eine sehr feine Tropfengröße bei einer großen Tropfengrößenverteilung aus [43], [44]. Typische Düsendurchmesser der Dralldruckdüsen liegen zwischen 0,1 mm und 2,5 mm [10]. Der zur Zerstäubung benötigte Druck variiert dabei mit der Größe der Düsenöffnung und dem Kraftstoffdurchsatz. So liegt der minimale Betriebsdruck bei einem Düsenöffnungsdurchmesser von $d_D = 0,1 \text{ mm}$ bei $p_{min}(0,1 \text{ mm}) = 6 \text{ bar}$ und für eine Durchmesser von $d_D = 2,5 \text{ mm}$ bei $p_{min}(2,5 \text{ mm}) = 1 \text{ bar}$. Die Tropfengröße liegt für Düsen mit einem Öffnungsquerschnitt von $d_D < 0,5 \text{ mm}$ in der Größenordnung von $20 \text{ } \mu\text{m}$ bis $30 \text{ } \mu\text{m}$ [45]. Die für ein Brenngaserzeugungssystem mit einer Leistung von 10 kW_{el} benötigten Einspritzdüsen liegen im unteren mit einer Dralldruckdüse realisierbaren Lastbereich. Für die benötigten niedrigen Massenströme ermöglichen die zur Verfügung stehenden Dralldruckdüsen nur eine Modulation zwischen etwa 50 % und 120 % Last. Um den geforderten Bereich von 25 % bis 120 % Last zu ermöglichen ist die Entwicklung eines innovativen Einspritzsystems erforderlich.

2.3 Dampferzeugungssystem

In Abschnitt 2.2 wurde das Konzept des in die Reaktoren der Brenngaserzeugung integrierten Dampferzeugungssystems erläutert. Um das geforderte kompakte Design des Gesamtsystems zu gewährleisten, ist eine möglichst genaue Bestimmung der benötigten Wärmetauscherflächen, sowie eine wärmetechnisch effiziente Integration der Wärmetauscher in die bestehenden Reaktoren entscheidend. Dies erfordert eine genaue Kenntnis der auftretenden Strömungs- und Wärmeübergangsphänomene. Im Dampferzeugungssystem wird flüssiges Wasser, bzw. Nassdampf, vollständig verdampft und anschließend überhitzt. Die dabei auftretenden Wärme- und Phasenübergangsphänomene beeinflussen entscheidend die Funktion und die Effizienz der Wärmetauscher. Diese Phänomene werden im Folgenden für das Zweiphasensystem Nassdampf detailliert vorgestellt.

2.3.1 Verdampfen

Das Verdampfen, der Phasenübergang zwischen flüssiger und gasförmiger Phase, kann durch zwei unterschiedliche Mechanismen erfolgen. Ein Flüssigkeitsgemisch beginnt zu sieden, sobald die Summe aller Partialdrücke der Komponenten in der flüssigen Phase größer oder gleich dem Systemdruck ist. Ist der Partialdruck einer Komponente in der Flüssigkeit größer als der Partialdruck der entsprechenden Komponente in der Gasphase, beginnt diese Komponente zu verdunsten. Die Verdunstung ist somit das Verdampfen einer Flüssigkeit ohne zu Sieden. Der Verdunstungsprozess verläuft langsamer als der Siedeprozess. In einem Einkomponentensystem entspricht der Partialdruck der Komponente dem Gesamtdruck, so dass der Phasenübergang nur durch Sieden erfolgen kann. In den Einkomponentensystemen der integrierten Dampferzeuger tritt somit keine Verdunstung auf. In der Quenchstufe des Shift-Reaktors wird flüssiges Wasser in heißes Reformat eingespritzt. In diesem Mehrkomponentensystem kann der Phasenübergang sowohl durch Verdunstung als auch durch Sieden erfolgen.

2.3.2 Siederegime

Das Sieden einer Flüssigkeit verläuft in Abhängigkeit der thermodynamischen Rahmenbedingungen in unterschiedlichen Siederegimen. Abbildung 2.15 zeigt diese Siedezustände im so genannten Nukiyama-Diagramm. Zur Ermittlung dieser Kurve wurde Wasser auf einer beheizten Oberfläche zum Sieden gebracht und anschließend die Temperatur der Heizfläche weiter erhöht [46]. Im Diagramm wird sowohl Behältersieden, ohne aufgeprägte Strömungsgeschwindigkeit ($v_{Fluid} = 0$), als auch Strömungssieden ($v_{Fluid} > 0$) mit unterschiedlichen aufgeprägten Strömungsgeschwindigkeiten, dargestellt. Dabei ist die Wärmestromdichte q über der Temperaturdifferenz ΔT_W zwischen der Heizfläche und dem Fluid aufgetragen.

Das Verhalten der siedenden Flüssigkeit in den verschiedenen Siedezuständen und ihr Einfluss auf den Wärmeübergang von der beheizten Wand auf das Fluid, werden im Folgenden anhand des Nukiyama-Diagramms 2.15 kurz dargestellt.

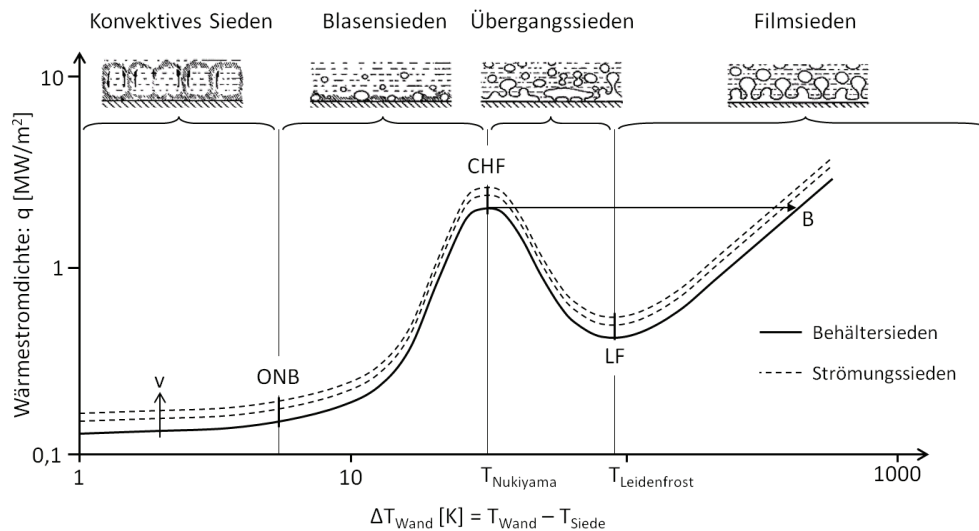


Abb. 2.15: Nukiyama-Diagramm: Wärmestromdichte über der Temperaturdifferenz zwischen Wand und Fluid [47], [48]

Konvektives Sieden (*natural / forced convection*)

Im Bereich des konvektiven Siedens, findet die Wärmeübertragung durch Konvektion statt. An der Heizfläche findet kein Phasenübergang statt, so dass sich an ihr keine Blasen bilden (vgl. Abbildung 2.15). Das Wasser verdampft ausschließlich an der Oberfläche des Wasserfilms. Beim konvektiven Sieden wird zwischen natürlicher Konvektion, die durch den Dichteunterschied zwischen warmen und kalten Bereichen im Wasser entsteht und erzwungener Konvektion, die aus der aufgeprägten Strömungsgeschwindigkeit des Wassers resultiert, unterschieden. Der Wärmeübergang nimmt mit der Strömungsgeschwindigkeit zu (vgl. Abschnitt 2.3.3). Im Bereich des konvektiven Siedens ist der Zusammenhang zwischen der Wärmestromdichte und der Temperaturdifferenz nahezu linear.

In den durch Konvektion geprägten Siedezuständen hängt der Wärmeübergang, von der Wand auf das siedende Fluid, von physikalischen Größen wie der Zähigkeit, der Dichte, der Wärmeleitfähigkeit und dem thermischer Ausdehnungskoeffizient des Fluids sowie von der Geometrie des Systems ab [49].

Blasensieden (*nucleate boiling*)

Der Bereich des Blasensiedens beginnt am so genannten *onset of nucleate boiling* (ONB), ab dem sich Dampfblasen an Keimstellen in der Heizfläche bilden. Keimstellen sind überwiegend kleine Vertiefungen der Oberfläche. Zu Beginn des Blasensiedens bilden sich nur wenige Blasen, so dass der Großteil des Wärmeübergangs noch durch Konvektion geschieht, man spricht von partiellem Blasensieden. Mit steigender Temperaturdifferenz nimmt die Anzahl der Blasen zu,

wodurch sich der in Abbildung 2.15 gezeigte Einfluss der Strömungsgeschwindigkeit verringert. Die Wärmestromdichte nimmt dabei mit der Anzahl der Blasen zu. Die sich ablösenden Blasen vermischen die wandnahe Grenzschicht und steigern somit den Wärmeübergang. Bei vollständig ausgebildetem Blasensieden kommt es zu einem starken Anstieg der Wärmestromdichte und die gesamte Heizfläche ist mit einem so genannten Blasenpelz belegt. Obwohl die Turbulenzen zunehmen, ist in diesem Bereich der Anteil der Konvektion vernachlässigbar. Höhere Strömungsgeschwindigkeiten haben hier fast keinen Einfluss mehr auf die Wärmeübertragung. Der Wärmeübergangskoeffizient nimmt beim Blasensieden mit steigendem Druck zu. In den durch die Phasenumwandlung und der Blasen- und Filmbildung geprägten Siedezuständen werden weitere physikalische Größen zur Beschreibung des Systems benötigt. Neben den für die Konvektion angegebenen Größen haben die Verdampfungswärme, die Siedetemperatur, die Dampfdichte, die Oberflächenspannung und die Mikrostruktur der Heizfläche einen entscheidenden Einfluss auf das Siedeverhalten des Fluids.

Siedekrise, kritische Wärmestromdichte, *burn out*

Im Punkt der kritischen Wärmestromdichte (*critical heat flux*, CHF) wird ein lokales Maximum der Wärmeübertragung erreicht. Von hier an bildet sich bei steigender Temperaturdifferenz der in Abbildung 2.15 dargestellte Dampffilm zwischen dem Wasser und der Heizfläche aus. Dieser Dampffilm besteht aus zusammenwachsenden Blasen und isoliert die Wand thermisch von der Flüssigkeit, so dass die Wärmeübertragung nur noch mittels Wärmeleitung und Wärmestrahlung durch die Dampfschicht erfolgen kann. Durch diese Effekte besteht die Gefahr eines *burn-out*, bei dem die Wandtemperatur schlagartig auf einen neuen stabilen Betriebspunkt B steigt, welcher häufig über der Schmelztemperatur des Materials liegt. Durch die Druckabhängigkeit des Wärmeübergangskoeffizienten beim Blasensieden steigt die Gefahr einer Siedekrise mit steigendem Druck. Höhere Strömungsgeschwindigkeiten hingegen verschieben den kritischen Punkt zu höheren Wärmestromdichten. Der entstehende Dampf wird hier schneller abtransportiert, so dass sich kein zusammenhängender Dampffilm bilden kann. Frisch einzuströmendes Wasser kommt weiterhin in Kontakt mit der Heizfläche.

übergangssieden (*transition boiling*)

Nach Überschreiten des lokalen Maximums der Wärmeübertragung schließt sich bei steigender Temperaturdifferenz der instabile Bereich des Übergangssiedens an. In diesem Bereich reicht die Temperatur der Heizfläche noch nicht aus, um einen stabilen Dampffilm aufrecht zu erhalten. Kleine Schwankungen können dazu führen, dass sich das System zurück in den Bereich des Blasensiedens oder direkt in den Bereich des Filmsiedens bewegt.

Leidenfrost-Punkt

Als Leidenfrostpunkt (LF) wird die Temperatur bezeichnet, ab der sich ein stabiler Dampffilm zwischen Wasser und Oberfläche bildet. Hier hat die Wärmeübertragung ein lokales Minimum. Im Leidenfrostpunkt ist das System ebenfalls sehr instabil, so dass es schon durch kleinste Schwankungen zurück in den Übergangsbereich oder in den stabilen Bereich des Filmsiedens

gelangen kann. Die genaue Lage des Leidenfrostpunktes hängt von vielen verschiedenen Faktoren ab. Dazu zählen unter anderem die Temperaturen, der Druck, die Strömungsgeschwindigkeit und die Oberflächenrauheit, so dass der Leidenfrostpunkt in der Regel nicht genau berechnet und vorausgesagt werden kann.

Filmsieden

Nach dem Überschreiten des Leidenfrostpunktes bildet sich mit steigender Temperatur ein stabiler Dampffilm. Der Wärmeübergang zwischen der Heizfläche und dem Wasser findet nur noch über Konvektion und Wärmestrahlung durch den Dampffilm statt. Beim Filmsieden werden, wie Abbildung 2.15 zeigt, sehr niedrige Wärmeübergangskoeffizienten erreicht.

2.3.3 Strömungs- und Siedeverhalten des Zweiphasensystems Nassdampf

Wie Abbildung 2.15 zeigt, liegen die zum Strömungssieden gehörenden dünnen gestrichelten Kurven auch bei verschiedenen Strömungsgeschwindigkeiten immer oberhalb der durchgehenden Kurve des Behältersiedens. Dabei fällt die Differenz der Wärmeübertragung für die verschiedenen Siedezustände unterschiedlich stark aus. Während in den Bereichen des konvektiven Siedens und des Filmsiedens bei steigender Strömungsgeschwindigkeit die Wärmeübergänge deutlich höher sind als im ruhenden System, ist die Differenz beim Übergangssieden schon kleiner und verschwindet beim Blasensieden nahezu vollständig. Die Kurven für konvektives Sieden münden, unabhängig von ihrer Geschwindigkeit, nahezu in demselben steilen Anstieg im Bereich des Blasensiedens. Besondere Bedeutung hat die Strömungsgeschwindigkeit in der Umgebung der kritischen Wärmestromdichte, die mit steigender Geschwindigkeit in höhere Bereiche verschoben wird. So lässt sich die Gefahr einer Siedekrise vermindern.

Thermodynamischer Dampfgehalt

Der Strömungsdampfgehalt beim Strömungssieden ist definiert als das Verhältnis aus Dampfmassestrom und Gesamtmassestrom:

$$\dot{x} = \frac{\dot{m}_{\text{Dampf}}}{\dot{m}_{\text{Gesamt}}}. \quad (2.19)$$

Unter der Annahme eines thermodynamischen Gleichgewichts lässt sich der sogenannte thermodynamische Dampfgehalt \dot{x}_{th} aus einer Enthalpiebilanz ermitteln:

$$\dot{x}_{th} = \frac{h - h'(p)}{\Delta h_v(p)}. \quad (2.20)$$

Hierbei ist h die mittlere Flüssigkeitsenthalpie, $h'(p)$ die Sättigungsenthalpie der Flüssigkeit beim Druck p und Δh_v die Verdampfungsenthalpie.

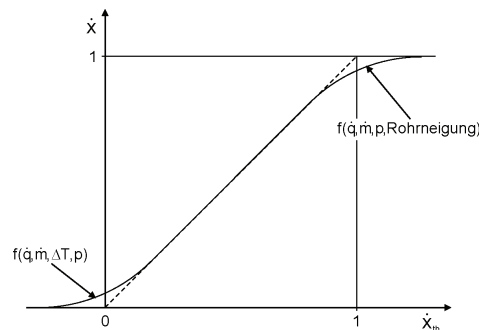


Abb. 2.16: Verhältnis von realem und thermodynamischem Strömungsdampfgehalt [50]

Abbildung 2.16 zeigt qualitativ den Zusammenhang zwischen realem und thermodynamischem Dampfgehalt. Der Verlauf zeigt für mittlere Strömungsdampfgehalte eine vernachlässigbare Abweichung zwischen \dot{x} und \dot{x}_{th} . Bei niedrigen Strömungsdampfgehalten nahe $\dot{x} = 0$, liegt der thermodynamische Strömungsdampfgehalt unterhalb des realen Strömungsdampfgehalts: $\dot{x}_{th} < \dot{x}$. In diesem Bereich, dem sogenannten unterkühlten Strömungssieden, ergibt sich aus der im thermodynamischen Gleichgewicht berechneten Enthalpiebilanz ein verspätetes Einsetzen der Verdampfung, wie es auch Abbildung 2.19 zeigt. Diese Abweichung resultiert aus einem inhomogenen Temperaturprofil über dem Strömungsquerschnitt. In direkter Nähe der Rohrwand hat das durchströmende Fluid schon seine Siedetemperatur erreicht, so dass es zu einer Dampfbildung kommt. Die ersten Dampfblasen entstehen an Stellen lokaler Überhitzung und rekondensieren direkt nach ihrer Entstehung. Bei einer gleichmäßigen Überhitzung der Wandgrenzschicht bleiben die Blasen erhalten und es kommt zu einer Netto-Dampfbildung. Da der Kern der Strömung noch unterkühlt ist, liegt die über den Querschnitt gemittelte Fluidtemperatur unterhalb der Siedetemperatur. Im Bereich hoher Strömungsdampfgehalte nahe $\dot{x} = 1$ liegt der thermodynamische Strömungsdampfgehalt über dem realen Strömungsdampfgehalt: $\dot{x}_{th} > \dot{x}$. In diesem Fall ist das Fluid in Wandnähe schon überhitzt, während die Strömung im Kern noch Siedetemperatur hat und noch wenige unvollständig verdampfte Tropfen enthält. Die Ausprägung dieser Abweichungen hängt vom übertragenen Wärmestrom, dem Massenstrom, der Temperaturdifferenz zwischen Wand und Fluid, dem Druck und der Rohrgeometrie ab.

Adiabate Strömungsformen in zweiphasigen Rohrströmungen

In die Reaktoren der Brenngaserzeugung sind Verdampfer integriert, in die flüssiges Wasser eintritt, welches im Strömungsverlauf verdampft und überhitzt wird. In einer solchen Zweiphasenströmung treten unterschiedliche Strömungsformen auf. Das folgende Unterkapitel beschreibt charakteristische Strömungsformen des Zweiphasensystems Nassdampf für ein vertikal und ein horizontal durchströmtes Rohr. Die sich ausbildenden adiabaten stationären Strömungsformen sind dabei nur abhängig vom Strömungsdampfgehalt. Siedephänome und instationäre Strömungszustände werden hier nicht berücksichtigt.

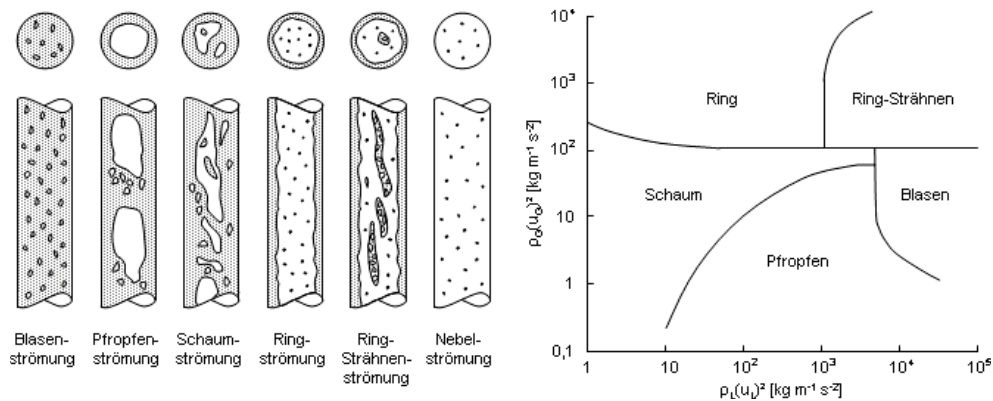


Abb. 2.17: Strömungsformenkarte vertikales Rohr [51]

Abbildung 2.17 zeigt schematisch die charakteristischen Strömungsformen des Zweiphasensystems Nassdampf und die dazugehörige Strömungsformenkarte für die Strömung durch ein vertikales Rohr. In Abhängigkeit des Strömungsdampfgehaltes bilden sich, wie die Strömungsformenkarte zeigt, unterschiedliche charakteristische Strömungen aus. Im Bereich niedriger Strömungsdampfgehalte bildet sich eine gleichmäßige Blasenströmung, in der die Blasengröße mit dem Strömungsdampfgehalt ansteigt. Diese Blasen wachsen bei höheren Strömungsdampfgehalten zusammen und bilden Pfropfen, die nahezu das gesamte Rohr ausfüllen. Bei weiter steigenden Strömungsdampfgehalten geht die Pfropfenströmung in eine Ringströmung über. Im Übergangsbereich, der sogenannten Schaum-Ringströmung, bildet sich eine ringförmige Wasserströmung aus, in der sich jedoch sowohl Dampfblasen im Flüssigkeitsfilm als auch große Wassertropfen im Dampf Kern befinden. Im Strömungszustand der Ringströmung ist die gesamte Rohrinne von einem dünnen Wasserfilm bedeckt, während im Strömungskern Nassdampf vorliegt. Bei höheren Massenstromdichten bilden sich in der Kernströmung Tropfenstrahlen aus. Mit steigendem Strömungsdampfgehalt verringert sich die Filmdicke, so dass die Wand schließlich bei großen Dampfgehalten austrocknet (*dryout*). Ab diesem Punkt strömt der Nassdampf bis zur vollständigen Verdampfung als Sprühströmung durchs Rohr. Die Innenwand des vertikalen Rohrs ist in allen Strömungsformen bis zum Austrocknen vollständig mit Wasser benetzt. Im vertikalen Rohr ist die Strömung, unabhängig von der jeweiligen Strömungsform, über dem gesamten Rohrumfang gleich.

Im Fall einer horizontalen Strömung bilden sich wie Abbildung 2.18 zeigt andere charakteristische Strömungsformen aus. Durch die horizontale Lage zeigt sich ein starker Einfluss der Gravitation auf das Strömungsverhalten. Im Unterschied zum vertikalen Rohr kann hier eine Teilbenetzung der Rohrinne auftreten, so dass die Strömung nicht mehr über den Umfang homogen ist. Im Bereich niedriger Dampfgehalte bildet sich auch hier eine gleichmäßige Blasenströmung aus, deren Blasen mit steigendem Dampfgehalt anwachsen und aufgrund des Dichteunterschieds an die Oberseite des Rohres wandern. Hier bilden sich wie im vertikalen Fall bei höheren Strömungsdampfgehalten Pfropfen aus, welche jedoch nicht den Durchmes-

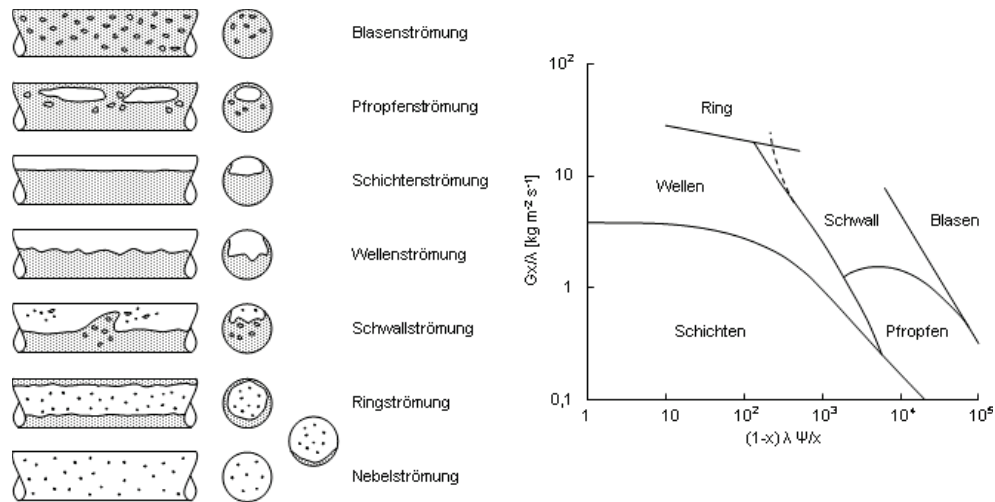


Abb. 2.18: Strömungsformenkarte horizontales Rohr [51]

ser des Rohres ausfüllen, sondern, in die Länge gezogen, an der Rohroberseite strömen. Bei noch höheren Dampfgehalten wachsen die einzelnen Pfropfen zusammen, so dass sich eine durchgehende Dampfschicht im oberen Rohrbereich bildet, während im unteren Bereich eine reine Flüssigkeitsströmung vorliegt. Mit steigendem Strömungsdampfgehalt bilden sich an der Phasengrenze der Schichtenströmung erst Wellen und später eine Schwallströmung aus. Mit steigenden Dampfgehalten bildet sich aus der Schwallströmung, entsprechend dem vertikalen Rohr, eine Ringströmung aus. Auch hier kommt es bei hohen Strömungsdampfgehalten zum Austrocknen, die Rohrrinnenseite ist nicht mehr benetzt und der Nassdampf strömt als Sprühströmung durch das Rohr. Im Gegensatz zum vertikalen Rohr trocknet das Rohr jedoch nicht gleichzeitig über den gesamten Umfang aus, sondern zuerst am Scheitelpunkt der Rohroberseite und erst abschließend an der Rohrunterseite. Es gibt also einen Start- und einen Endpunkt des Austrocknens. Im horizontalen durchströmten Rohr ist das Rohr nur im Strömungsbereich der Blasen und der Ringströmung vollständig benetzt. In den anderen Strömungsformen liegt nur eine Teilbenetzung oder eine Austrocknung der Oberfläche vor.

In einem schräg ausgerichteten Rohr bilden sich abhängig vom Neigungswinkel, der Massendichte und des Strömungsdampfgehaltes, Strömungsformen zwischen den beiden vorgestellten Extremfällen aus. Eine Diskussion der in geneigten Rohren auftretenden Strömungsphänomene findet sich in [50]. Die für das Dampferzeugungssystem interessanten Sonderfälle einer Rohrwendel und eines Ringspaltes werden im Folgenden gesondert betrachtet.

Siede- und Wärmeübergangsphänomene

In den vorangegangenen Abschnitten wurden charakteristische Strömungsformen in durchströmten Rohren in Abhängigkeit des Strömungsdampfgehaltes vorgestellt. Das Auftreten die-

stromdichten ist der konvektive Wärmetransport so effektiv, dass es zu keiner Überhitzung der wandnahen Grenzschicht kommt. Der Wärmeübergang findet rein konvektiv statt. Bei hohen Wärmestromdichten und/oder niedrigen Massenstromdichten wird die übertragene Wärme im Fluid nicht effektiv abtransportiert. Es kommt zu einer lokalen Überhitzung der wandnahen Grenzschicht, so dass unterkühltes Blasensieden auftritt. Die Wandtemperatur steigt in diesem Abschnitt, aufgrund des geringen Wärmeabtransports, stark an. An Stellen lokaler Überhitzung bilden sich erste Blasen, die jedoch direkt rekondensieren. Die Bildung und Rekondensation dieser ersten Blasen führt zu einer erhöhten Turbulenz der Strömung in der wandnahen Grenzschicht und somit zu einem Anstieg des Wärmeübergangskoeffizienten. Bei einer gleichmäßigen Überhitzung der Wandgrenzschicht kommt es zu einer Nettodampfentwicklung in der wandnahen Grenzschicht, wohingegen der Kern der Strömung noch unterkühlt ist: $\dot{x} < \dot{x}_{th}$.

Mit steigendem Dampfgehalt, $\dot{x} > \dot{x}_{th}$, bilden sich die vorgestellten charakteristischen Strömungsformen aus. Abhängig von der übertragenen Wärmestromdichte und der Massenstromdichte des Fluids kann auch hier sowohl Blasensieden als auch konvektives Sieden auftreten. Für niedrige übertragene Wärmestromdichten und/oder hohe Massenstromdichten des Fluids ist der Wärmetransport von der Rohrrinnenwand so effektiv, dass es zu keiner für das Einsetzen von Blasensieden ausreichenden Überhitzung der wandnahen Grenzschicht kommt. Der Wärmeübergang findet rein konvektiv in die rein flüssige Phase statt ($\alpha(z)_k = \alpha_{LO}$). Beim konvektiven Strömungssieden verdampft das Wasser an der Phasengrenze zwischen Flüssigkeit und Dampf. Die ersten Blasen entstehen dabei an Orten lokaler Überhitzung und Keimstellen. Mit steigendem Strömungsdampfgehalt bilden sich die in Abbildung 2.19 dargestellten Strömungsformen. Der Wärmeübergang in die flüssige Phase findet bis zum Austrocknen konvektiv statt. Da mit dem Dampfgehalt das Strömungsvolumen und somit die Strömungsgeschwindigkeit steigt, kommt es zu einem Anstieg des Wärmeübergangskoeffizienten. Mit steigendem Dampfgehalt trocknet die Rohrrinnenwand aus. In der Sprühströmung wird die Wärme konvektiv in die Dampfphase übertragen. Der lokale Wärmeübergangskoeffizient fällt auf den Wert für konvektiven Wärmeübergang in reinem Dampf ($\alpha(z)_k = \alpha_{GO}$).

Dieser Verlauf des Wärmeübergangskoeffizienten $\alpha(z)_k$ bei konvektivem Sieden einer Rohrströmung lässt sich in Abhängigkeit des Strömungsdampfgehalts mit folgender Gleichung beschreiben:

$$\frac{\alpha(z)_k}{\alpha_{LO}} = \left\{ (1 - \dot{x})^{0,01} \left[(1 - \dot{x})^a + b \dot{x}^c \left(\frac{\rho'}{\rho''} \right)^d \right]^{-2,2} + \dot{x}^{0,01} \left[\frac{\alpha_{GO}}{\alpha_{LO}} \left(1 + 8 (1 - \dot{x})^{0,7} \left(\frac{\rho'}{\rho''} \right)^{0,67} \right) \right]^{-2} \right\}^{-0,5} \quad (2.21)$$

Hierbei sind ρ' und ρ'' die Stoffdichten von Wasser und Dampf bei Siedetemperatur. Die Extremwerte des Wärmeübergangskoeffizienten für die reine Flüssigkeit (α_{LO}) und den reinen Dampf (α_{GO}) werden mit den entsprechenden Wärmeübergangsgesetzen bei Siedetemperatur mit $\dot{x} = 0$ bzw. $\dot{x} = 1$ berechnet. Für ein senkrechtes Rohr gilt: $a = 1,5$, $b = 1,9$, $c = 0,6$ und $d = 0,35$ und im horizontalen Rohr gilt: $a = 1$, $b = 1,2$, $c = 0,4$ und $d = 0,37$.

Der Extremwert einer reinen Flüssigkeit am Eintritt des ATR Wärmetauschers führt zu einer laminaren Strömung, wohingegen die reine Gasphasenströmung am Verdampferaustritt turbulent ist. Für die mittlere Nusselt Zahl eines durchströmten Rohres gilt im laminaren Fall bei konstanter Wandtemperatur:

$$Nu_m = \left\{ 3,66^3 + 0,7^3 + \left[1,615 \left(Re Pr \frac{d_i}{l} \right)^{1/3} - 0,7 \right]^3 \right\}^{1/3} \quad (2.22)$$

und für eine turbulente Strömung ($Re > 10^4$):

$$Nu_{m,T} = \frac{\xi/8 Re Pr}{1 + 12,7 \sqrt{\xi/8 (Pr^{2/3} - 1)}} \left[1 + \left(\frac{d_i}{l} \right)^{2/3} \right], \quad (2.23)$$

$$\text{mit: } \xi = (1,8 \log_{10} Re - 1,5)^{-2}. \quad (2.24)$$

Hierbei ist d_i der Innendurchmesser und l die Länge des Rohres. Bei hohen übertragenen Wärmestromdichten und/oder geringen Massenstromdichten wird der Stofftransport von der Rohrrinnenwand so gering, dass die wandnahe Grenzschicht überhitzt und Blasensieden auftritt. Die Lage des ONB lässt sich über die zur Blasenbildung benötigte Wärmestromdichte \dot{q}_{onb} berechnen:

$$\dot{q}_{onb} = \frac{2 \sigma T_S \alpha_{L0}}{r_{kr} \rho'' \Delta h v}, \quad \text{mit: } Re = \frac{\dot{m} d_h}{\eta_L} \quad \text{und} \quad r_{kr} = 0,3 \cdot 10^{-6}. \quad (2.25)$$

Für $\dot{q} < \dot{q}_{onb}$ siedet die Flüssigkeit rein konvektiv, ab $\dot{q} > \dot{q}_{onb}$ setzt Blasensieden ein. Im Falle des Blasensiedens ist durch die Überhitzung der wandnahen Grenzschicht auch eine höhere Wandtemperatur zu beobachten. Der Wärmeübergangskoeffizient beim Blasensieden ist bei vollausgebildetem Blasensieden und geringem Strömungsdampfgehalt $\dot{x} \approx \dot{x}_{th}$ maximal. Mit steigendem Strömungsdampfgehalt steigt die Strömungsgeschwindigkeit und somit auch die Effizienz des konvektiven Wärmeübergangs. Dadurch nimmt mit steigendem Strömungsdampfgehalt die Überhitzung der wandnahen Grenzschicht ab, so dass auch der Wärmeübergangskoeffizient abnimmt. Im Bereich einer Ringströmung spielt der konvektive Wärmeübergang eine immer größere Rolle. Im dünnen Wasserfilm an der Rohrrinnenwand kann der konvektive Stofftransport so effektiv werden, dass es in der Wandgrenzschicht nicht mehr zu einer für Blasensieden ausreichenden Überhitzung kommt und das Blasensieden in konvektives Sieden übergeht. Bei sehr hohen Wärmestromdichten kann jedoch auch eine Siedekrise auftreten. Beim Auftreten einer Siedekrise oder im Dryout sinkt der Wärmeübergangskoeffizient ebenfalls auf den Wert für den konvektiven Wärmeübergang in der Dampfphase. Für den Verlauf des Wärmeübergangskoeffizienten beim Blasensieden gilt folgender Zusammenhang:

$$\frac{\alpha(z)_b}{\alpha_0} = C_F \left(\frac{\dot{q}}{\dot{q}_0} \right)^n F(p^*) F(d) F(W) F(\dot{m}, \dot{x}). \quad (2.26)$$

Der lokale Strömungswärmeübergangskoeffizient $\alpha(z)_b$ wird hierbei in Bezug auf den Wärmeübergangskoeffizienten beim Behältersieden α_0 berechnet. Die einzelnen Faktoren berücksichtigen dabei die Wärmestromdichte (\dot{q}_0) und den Siededruck ($F(p^*)$), die Massenstromdichte und den Strömungsdampfgehalt ($F(\dot{m}, \dot{x})$), den Rohrdurchmesser ($F(d)$) und die Heizwand-eigenschaften ($F(W)$).

In der Sprühströmung kommt es im Bereich $\dot{x}_{th} < \dot{x} < 1$ auch zu einem über den Querschnitt inhomogenen Temperaturprofil. In der wandnahen Grenzschicht liegt ein Dampfgehalt von $\dot{x} = 1$ vor, so dass der reine Wasserdampf überhitzt wird. Der Strömungskern hat in diesem Bereich weiterhin Siedetemperatur und enthält die letzten Wassertropfen. Ab einem Dampfgehalt von $\dot{x} = 1$ liegt wieder eine einphasige Dampfströmung vor.

Bei einem horizontalen Rohr kann es, wie schon diskutiert, zu einer Teilbenetzung der Rohrrinnenwand kommen. In diesem Fall müssen die beiden Phasen getrennt betrachtet werden. So kann, wie Abbildung 2.18 zeigt, zum Beispiel in einer Schichtenströmung ein konvektiver Wärmeübergang in die Dampfphase zeitgleich mit Blasensieden in der Flüssigkeitsphase stattfinden.

Kritische Siedezustände

Um einen guten Wärmeübergang zwischen der beheizten Rohrwand und der Nassdampfströmung zu gewährleisten, ist eine vollständige Benetzung der Rohrrinnenwand aufrechtzuerhalten. Der benetzende Wasserfilm kann durch zwei unterschiedliche Mechanismen aufgelöst werden. Beim Austrocknen ist der Strömungsdampfgehalt so hoch, dass das homogen in der Strömung verteilte Wasser nicht mehr zur vollständigen Benetzung der Wand ausreicht. Sowohl an der Wand als auch in der freien Strömung ist der Dampfanteil sehr hoch. Konstruktiv kann eine zusätzliche Rotation der Strömung Wassertropfen zur Rohrrinnenwand transportieren und somit den Bereich des Austrocknens in den Bereich höherer Dampfgehalte verschieben. Bei der vollständigen Verdampfung von Nassdampf lässt sich ein Austrocknen jedoch nicht verhindern. Bei einer Siedekrise ist die Wärmestromdichte so groß und der Wärmetransport von der Wand so gering, dass sich zwischen Wand und Fluid ein Dampffilm bildet. Filmsieden kann auch bei niedrigen Dampfgehalten auftreten. Eine Verbesserung des Wärmeübergangskoeffizienten durch Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit oder der Turbulenz verringert die Neigung zum Filmsieden. Für den kritischen Dampfgehalt zum Auftreten einer Siedekrise in einem nach oben durchströmten Rohr gilt im Druckbereich 4,9 bar bis 29,4 bar:

$$\dot{x}_{krit} = 10,795 \dot{q}^{-0,125} \dot{m}^{-0,333} \cdot (d \cdot 1000)^{-0,07} e^{0,01715p}. \quad (2.27)$$

Für den in den Reaktoren der Brenngaserzeugung relevanten niedrigeren Druckbereich $1\text{bar} < p < 2\text{bar}$ wurde keine entsprechende Abhängigkeit gefunden. Für die in den Wärmetauschern zu erwartenden Wärmestromdichten liegt der kritische Dampfgehalt in einem gerade Rohr nach Gleichung (2.27) im Bereich von 0,7 bis 0,8.

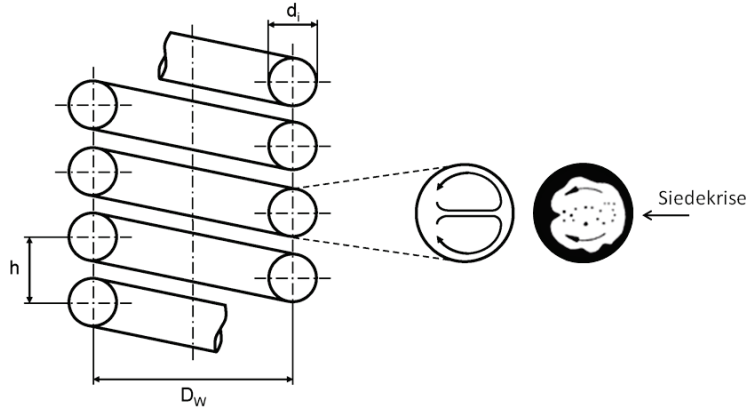


Abb. 2.20: Strömungs- und Wärmeübergangsphänomene in einer Rohrwendel [50], [53]

Geometrieabhängigkeit der Strömungs- und Siedephänomene

Wie Abbildung 2.12 zeigt, sind die integrierten Wärmetauscher und Verdampfer als Rohrwendel bzw. als Ringspalt konstruiert. Für beide Geometrien lassen sich im Vergleich zum durchströmten Rohr abweichendes Strömungs- und Siedeverhalten erkennen.

Die Windungsgeometrie einer Rohrwendel wird durch den Durchmesser D beschrieben, welcher sich aus dem Windungsdurchmesser D_W und der Windungssteigung h ergibt:

$$D = D_W \left[1 + \left(\frac{h}{\pi D_W} \right)^2 \right]. \quad (2.28)$$

Abbildung 2.20 zeigt das Strömungsverhalten in einer Rohrwendel. Im Gegensatz zum einfachen durchströmten Rohr bildet sich in einer Rohrwendel, infolge von Zentrifugalkräften, eine Sekundärströmung senkrecht zur Hauptströmungsrichtung aus. Diese Sekundärströmung hat die Form eines Doppelwirbels, welcher in der horizontalen Rohrebene in radialer Richtung der Windung strömt. Diese sekundäre Strömungsstruktur bedeuten eine Verstärkung der Konvektion an der Rohrwand und verbessert somit den Wärmeübergang im Vergleich zum geraden Rohr. Die Nusseltzahl einer laminaren Strömung ergibt sich für eine Rohrwendel aus [50]:

$$Nu = \left\{ 3,66 + 0,08 \left[1 + 0,8 \left(\frac{d}{D} \right)^{0,9} \right] Re^m Pr^{1/3} \right\} \left(\frac{Pr}{Pr_W} \right)^{0,14}, \quad (2.29)$$

$$\text{mit: } m = 0,5 + 0,2903 \left(\frac{d}{D} \right)^{0,194}. \quad (2.30)$$

Bei Reynoldszahlen größer als Re_{krit} ist die Strömung in einer Rohrwendel turbulent:

$$Re_{krit} = 2300 \left[1 + 8,6 \left(\frac{d}{D} \right)^{0,45} \right]. \quad (2.31)$$

Für eine turbulente Strömung in einer Rohrwendel gilt [50]:

$$Nu = \frac{\xi/8 \, Re \, Pr}{1 + 12,7 \sqrt{\xi/8} (Pr^{2/3} - 1)} \left(\frac{Pr}{Pr_w} \right)^{0,14}, \quad \text{mit: } \xi = \frac{0,3164}{Re^{0,25}} + 0,03 \left(\frac{d}{D} \right)^{0,5}. \quad (2.32)$$

Neben der Verbesserung des Wärmeübergangs beeinflusst die gewundene Geometrie auch das kritische Siedeverhalten der Strömung. Die Doppelwirbel und die generelle Drallströmung in einer Rohrwendel drücken die Wassertropfen an die Rohrrinnenwand, so dass das Rohr vollständig benetzt wird. Abbildung 2.20 zeigt den Einfluss der sekundären Strömungseffekte auf das kritische Siedeverhalten in einer Rohrwendel bei niedrigem Betriebsdruck. Im dargestellten Fall transportieren die Doppelwirbel den benetzenden Flüssigkeitsfilm von der Außenwand nach Innen. Somit tritt eine Siedekrise zuerst an der Rohraußenwand auf. Bei einer gering ausgebildeten Sekundärströmung dominieren die Zentrifugalkräfte die Wandbenetzung, so dass der Scheitel und der Grund des Rohres zuerst austrocknen. Infolge der diskutierten Strömungsphänomene liegt der kritische Dampfgehalt in einer Rohrwendel in höheren Bereichen als im geraden Rohr. Experimentell wurde am Scheitel und Grund des Wendelrohres ein kritischer Dampfgehalt im Bereich von 0,8 bis 0,95 und an den Außen- und Innenseiten der Rohrwendel ein kritischer Dampfgehalt von bis zu $x_{krit} = 0,99$ ermittelt.

Das Strömungs- und Siedeverhalten in einem Ringspalt lässt sich aus den Gegebenheiten im geraden Rohr herleiten. Im turbulenten Fall ergibt sich die Nusseltzahl aus dem Wärmeübergangsgesetz eines geraden Rohres und dem Verhältnis aus Spaltinnendurchmesser d_i und Außendurchmesser d_a [50]:

$$Nu = 0,86 \left(\frac{d_i}{d_a} \right)^{-0,16}. \quad (2.33)$$

Für den technisch relevanten Fall eines Ringspalt mit einer im Vergleich zum Durchmesser geringen Spalthöhe, ist der Wärmeübergang immer geringer als im geraden Rohr. Abbildung 2.21 zeigt den Wärmeübergangskoeffizienten in Abhängigkeit vom Dampfgehalt für ein gerades Rohr, für eine Rohrwendel und für einen Ringspalt am Beispiel des ATR 9.2 Wärmetauschers. Der angenommene Massenstrom ist für alle Fälle gleich. Die Rohrwendel und das gerade Rohr haben den gleichen Durchmesser und somit auch die gleiche Reynoldzahl. Durch die auftretenden Sekundärströmungen ist der Wärmeübergangskoeffizient in einer Rohrwendel etwa um den Faktor zwei größer als im geraden Rohr. Dieser Effekt ist in einer vertikal positionierten Rohrwendel stärker ausgeprägt als in einer horizontal ausgerichteten Wendel. Die Durchströmfläche des Ringspalt ist um den Faktor 22 größer, wodurch sich die Strömungsgeschwindigkeit und somit auch der Wärmeübergangskoeffizient verringert. Im betrachteten Beispiel liegt im Ringspalt auch bei einem Dampfgehalt von 100 % eine laminare Strömung vor, wodurch sich ein niedriger Wärmeübergangskoeffizient ergibt. Unter der Annahme einer durch Einbauten erzwungenen turbulenten Spaltströmung ergibt sich der Wärmeübergangskoeffizient aus Gleichung (2.33). Der Verlauf liegt somit geringfügig unter der Kurve des geraden Rohrs.

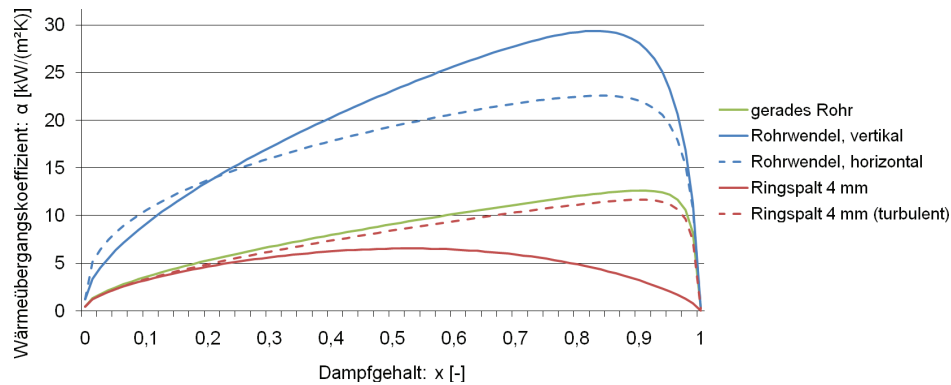


Abb. 2.21: Wärmeübergangskoeffizient in Abhängigkeit des Strömungsdampfgehalts für ein gerades Rohr, eine Rohrwendel und einen Ringspalt, nach [50]

2.3.4 Siede- und Strömungsverhalten von Einzeltropfen und Tropfensprays

Im vorangegangenen Abschnitt wurde das Strömungs- und Siedeverhalten des Zweiphasensystems Nassdampf in einer globalen Beschreibung vorgestellt. Diese Beschreibung ist vereinfachend und basiert auf gemittelten Werten und empirischen Zusammenhängen. Das genaue Verständnis des Siedeverhaltens von Nassdampf oder eines Tropfensprays erfordert eine lokale Auflösung der Einzeltropfen.

Aufgelegter Einzeltropfen

In Abschnitt 2.3.2 wurden verschiedene Siedezustände am Beispiel des Behälter- bzw. Strömungssiedens vorgestellt. Neben dieser allgemeinen Betrachtung der Siedezustände ist für diese Arbeit auch das Verhalten von Wassertropfen auf einer heißen Oberfläche bedeutend. Dazu wird im Folgenden zunächst das Verhalten eines Einzeltropfens auf einer heißen Oberfläche beschrieben [54]. Abbildung 2.22 zeigt die Verdampfungszeit eines auf die Heizfläche aufgelegten Einzeltropfens in Abhängigkeit von der Wandtemperatur. Bei der Nukiyama Temperatur T_N , der Übergangstemperatur vom Blasensieden zum Übergangssieden, befindet sich das Minimum der Verdampfungszeit. Dies entspricht dem in Abbildung 2.15 dargestellten lokalen Maximum der Wärmestromdichte. Bei der Leidenfrosttemperatur θ_L befindet sich ein lokales Maximum der Verdampfungszeit. Der aufgelegte Einzeltropfen ähnelt dem Behältersieden, was man auch bei einer Gegenüberstellung der Abbildungen 2.15 und 2.22 erkennt: Das lokale Maximum der Wärmestromdichte beim Behältersieden fällt mit der minimalen Verdampfungszeit eines aufgelegten Einzeltropfens zusammen. Ebenso entspricht die lokale minimale Wärmestromdichte im Leidenfrostpunkt dem lokalen Maximum der Verdampfungszeit.

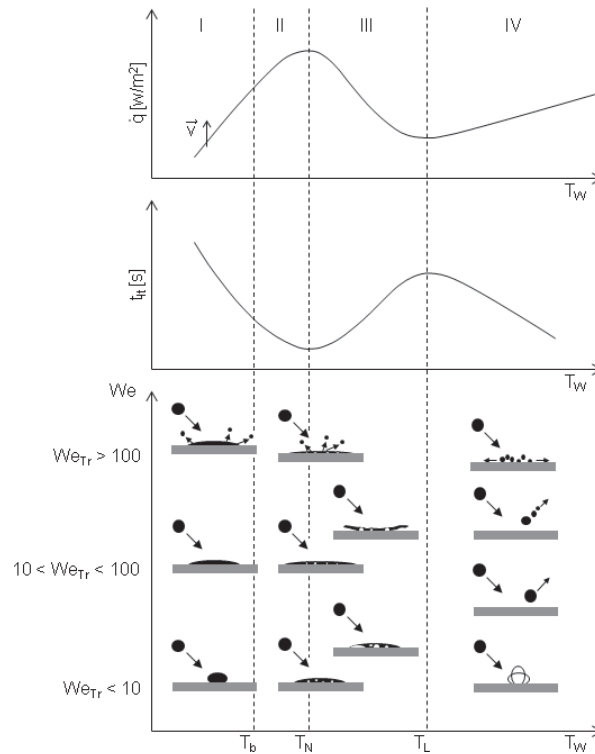


Abb. 2.22: Tropfen-Wand Wechselwirkungen und die sich daraus ergebenden Verläufe der Verdampfungszeit und der Nukiyama-Kurve in Abhängigkeit der Wandtemperatur und der Weberzahl [47], [54]

Einzeltropfenprall

Wird der Einzeltropfen hingegen nicht auf die Heizfläche aufgelegt, sondern auf diese aufgesprüht, treten weitreichende Effekte auf, die den Wärmeübergang von der Wand auf das Fluid ebenfalls entscheidend beeinflussen. Dieser so genannte Einzeltropfenprall lässt sich durch die Temperaturen und durch verschiedene dimensionslose Kennzahlen, wie z.B. der Reynoldszahl beschreiben [55].

Die wichtigste Kennzahl ist die Weberzahl, die das Verhältnis zwischen der kinetischen Energie eines Tropfens und seiner Oberflächenenergie angibt:

$$We_{Tr} = \frac{\rho_{Tr} u_{Tr}^2 d_{Tr}}{\sigma_{Tr}} \quad (2.34)$$

wobei ρ_{Tr} die Tropfendichte in $[\text{kg}/\text{m}^3]$, u_{Tr} die Tropfengeschwindigkeit in $[\text{m}/\text{s}]$, d_{Tr} der Tropfendurchmesser in $[\text{m}]$ und σ_{Tr} die Oberflächenspannung des Tropfens in $[\text{N}/\text{m}]$ ist.

Abbildung 2.22 zeigt das Verhalten eines auf eine heiße Wand auftreffenden Einzeltropfens in Abhängigkeit von der Wandtemperatur und der Weberzahl. Der rechte Teil der Abbildung zeigt Tropfen, die auf eine Wand mit einer Temperatur oberhalb der Leidenfrosttemperatur auftreffen. Ein aufgelegter Tropfen würde bei diesen Randbedingungen Filmsieden, also auf einem dünnen Dampffilm über der Oberfläche schweben. Das Verhalten eines aufprallenden Tropfens variiert mit seiner Weberzahl. Ein Tropfen mit kleiner Weberzahl wird als Ganzes von der Wand zurückgeworfen. Bei mittleren Weberzahlen zerfallen die Tropfen in wenige Sekundärtropfen, die auch von der Wand zurückgeworfen werden. Tropfen mit hoher Weberzahl zerplatzen vollständig in unzählige Sekundärtropfen, die in einer Grenzschicht an der heißen Oberfläche entlang strömen. Diese Sekundärtropfen verhalten sich gemäß dem Siedezustand Filmsieden [56]. Im linken Teil der Abbildung wird das Tropfenverhalten bei Temperaturen unterhalb der Nukiyama-Temperatur gezeigt. Mit niedriger Weberzahl auftreffende Tropfen benetzen die Oberfläche und bilden einen kleinen Wasserfilm. Bei hohen Weberzahlen wird die heiße Oberfläche zwar ebenfalls benetzt, allerdings werden hier aufgrund der hohen kinetischen Energie kleine Sekundärtropfen aus dem Wasserfilm herausgeschleudert. Innerhalb des Wasserfilms findet konvektives Sieden oder Blasensieden statt.

Wärmeübergang beim Einzeltropfenprall

Der von der Heizfläche abgegebene Wärmestrom wird durch die Verdampfungseffektivität ε_v der Einzeltropfen bestimmt. Dabei gibt die Verdampfungseffektivität das Verhältnis zwischen der vom Tropfen aufgenommene Wärme Q_{Tr} und der zur vollständigen Verdampfung des Tropfens benötigten Wärme an [55]:

$$\varepsilon_v = \frac{Q_{Tr}}{m_{Tr} \Delta h_v} \quad (2.35)$$

mit m_{Tr} : Tropfenmasse, Δh_v : Verdampfungsenthalpie.

Eine Verdampfungseffektivität von $\varepsilon_v = 1$ bedeutet dabei das vollständige Verdampfen der aufgespritzten Wassermenge. Bei einer konstanten Wasserbeaufschlagungsdichte nimmt die übertragene Wärmestromdichte mit der Verdampfungseffektivität zu [54]. Die lokale Verdampfungsrate am auftreffenden Tropfen ist an der Dreiphasengrenze zwischen der festen Oberfläche, dem flüssigen Wasser und dem Wasserdampf maximal [57]. Bei einer Reduzierung der Tropfendurchmesser ergibt sich ein vergrößerter Bereich der Dreiphasengrenze. Gleichzeitig verdampfen Wassertropfen mit kleinem Durchmesser, bei gleichen Randbedingungen, schneller als Tropfen mit einem größeren Durchmesser. Die Verdampfungseffektivität nimmt mit sinkendem Tropfendurchmesser zu. Im Bereich niedriger Weberzahlen führt eine Steigerung der Weberzahl zu einem Anstieg der Verdampfungseffektivität, wobei hier ab einer bestimmten Weberzahl im Bereich $We \approx 100$ ein konstanter Wert erreicht wird [54]. Liegt die Wandtemperatur der Heizfläche über der Leidenfrosttemperatur, so spielt die Siedeverzugszeit des Wassers eine entscheidende Rolle bei der Wärmeübertragung. In dieser Zeit findet kein Phasenwechsel statt, so dass die Tropfen im direkten Kontakt mit der Wand sind und in bestimmten Fällen sogar bis über die Siedetemperatur erhitzt werden können [54]. Im direkten Kontakt mit der Heizfläche ist der Wärmestrom zwischen Tropfen und Wand um etwa zwei Zehnerpotenzen

größer als bei einem voll ausgebildeten Dampffilm [16].

Tropfenspray auf heißer Oberfläche

Die in dieser Arbeit untersuchten Verdampfer arbeiten mit einem Tropfenspray, das auf eine Heizfläche aufgebracht wird. Es treten zwei unterschiedliche Typen auf. Entweder wird Nassdampf über die heiße Wand eines Wärmetauschers geleitet oder die Wassertropfen werden direkt auf diese aufgesprüht. Der diskutierte Fall des Einzeltropfens bildet zusammen mit den erläuterten Siedezuständen die Basis für diese Betrachtung. Jeder Tropfen im Spray verhält sich zunächst wie ein Einzeltropfen. Da die einzelnen Tropfen keine einheitliche Größe aufweisen und die Oberfläche in ihrer Temperatur und Geometrie inhomogen ist, ist es möglich, dass die Tropfen kein einheitliches Wandverhalten zeigen. Abhängig vom Wandverhalten kann es zu Wechselwirkungen zwischen den einzelnen Tropfen kommen, so dass sich Zustände ausbilden, die den allgemeinen Siedezuständen entsprechen. Aus den vorangehenden Abschnitten ergeben sich somit verschiedene mögliche Wechselwirkungen zwischen den Tropfen und der Heizfläche:

1. Die Tropfen werden in irgendeiner Form von der Wand zurückgeworfen, wobei sie als ein einzelner Tropfen erhalten bleiben oder in mehrere Sekundärtropfen zerfallen. Der Abprallwinkel und die Anzahl der Sekundärtropfen hängen dabei von der Wandtemperatur, der Weberzahl und anderen äußeren Umständen ab [58].
2. Die Tropfen bilden einen geschlossenen Wasserfilm auf der Oberfläche. Die Wandtemperatur liegt unterhalb der Nukiyama-Temperatur. In diesem Film kann sowohl freies, als auch erzwungenes konvektives Sieden oder Blasensieden auftreten. Auf dem Wasserfilm auftreffende Tropfen können entweder ganz in diesem aufgehen oder, abhängig der Weberzahl, beim Auftreffen zerplatzen und Sekundärtropfen freisetzen.
3. Die Tropfen verdampfen schlagartig beim Auftreffen auf der Oberfläche. Dies entspricht der in Abbildung 2.22 dargestellten schnellsten Verdampfung bei der Nukiyama-Temperatur.
4. Die Tropfen strömen in einer Grenzschicht an der Oberfläche entlang. Dabei sind die Tropfen durch eine dünne Dampfschicht von der Oberfläche getrennt. Dieses Wandverhalten entspricht dem Filmsieden und dem in Abbildung 2.15 dargestellten Fall einer Wandtemperatur oberhalb der Leidenfrosttemperatur bei hoher Weberzahl.

Die Grenzen zwischen den möglichen Wechselwirkungen sind dabei fließend. Auch ein simultanes Auftreten ist möglich. Verdampft zum Beispiel nur ein Teil der Tropfen schlagartig, bildet sich mit der Zeit ein Wasserfilm. Auf diesem Wasserfilm können einfallende Tropfen zerspritzen und zurückgeworfen werden. Schon eine kleine Änderung der Temperaturen [59], der Oberflächenbeschaffenheit, des Auftreffwinkels, der Auftreffgeschwindigkeit [60] oder anderer Einflussgrößen kann dazu führen, dass der Leidenfrostpunkt überschritten wird und die Tropfen ins Filmsieden übergehen. In den Bereichen des konvektiven Siedens und des Blasensiedens hat der Auftreffwinkel der Wassertropfen keinen signifikanten Einfluss auf die Wärmeübertragung.

Generell ist jedoch ein Auftreffwinkel normal zur Oberfläche zu bevorzugen [61]. Welches Siedeverhalten sich ausbildet, hängt dabei entscheidend von der Wasserbeaufschlagungsdichte ab. Auch wenn einige wenige Tropfen noch direkt auf der Wand verdampfen, kann sich bei erhöhter Wasserbeaufschlagung ein Film ausbilden. Ist der Wasserstrom hingegen so niedrig, dass die Wand austrocknet, so sinkt der Wärmeübergangskoeffizient gegenüber dem Fall einer nassen Wand schlagartig um zwei bis drei Größenordnungen. Die einzelnen Tropfen eines Sprays stehen, im Gegensatz zum Einzeltropfenprall, in Wechselwirkung miteinander. Die auftreffenden Tropfen werden dabei durch zuvor aufgetroffene Tropfen, benachbart auftreffende Tropfen, nachfolgende Tropfen und durch überlagerte Strömungen beeinflusst, wodurch sich das Siedeverhalten im Vergleich zum Einzeltropfenprall verändern kann. Neben den thermischen Randbedingungen hängt die Effektivität der Tropfenverdampfung also von der geometrischen Gestaltung der Heizfläche und der Sprühregion sowie den Eigenschaften des Tropfensprays ab. Die Sprayeigenschaften werden durch die Eigenschaften der Düse bestimmt, wodurch die Wahl der Düse entscheidenden Einfluss auf die Wärmeübertragung hat [46]. Zur Erreichung eines optimalen Wärmeübergangs zwischen Heizfläche und Wasser, werden aus den vorangegangenen Betrachtungen die folgenden Regeln abgeleitet:

1. Das System sollte eine möglichst homogene Temperatur- und Tropfenverteilung aufweisen, da sonst kein gleichmäßiges Siedeverhalten auftritt.
2. Die maximale Wärmestromdichte wird bei der Nukiyama-Temperatur erreicht. Hier besteht jedoch die Gefahr einer Siedekrise.
3. Die Wasserbeaufschlagungsdichte sollte so gewählt werden, dass sich kein geschlossener Wasserfilm bildet.
4. Ein schneller Abtransport der nicht vollständig verdampften Tropfen muss gewährleistet sein, da sich sonst im Falle der Siedekrise ein isolierender Dampffilm unter den Tropfen ausbildet. Im Falle eines Siedeverzugs sollten die Tropfen allerdings während der Zeit des Direktkontakts an der Heizfläche verbleiben und erst bei der Ausbildung eines Dampffilms abtransportiert werden. Die unvollständig verdampften Tropfen müssen an anderer Stelle wieder in Kontakt mit der Wand gelangen, um eine vollständige Verdampfung zu erhalten [54].
5. Die Tropfen sollten einen möglichst kleinen Durchmesser haben, um eine höhere Verdampfungseffektivität und eine homogene Tropfenverteilung zu gewährleisten [54].
6. Die Tropfen sollten möglichst senkrecht auf die Oberfläche treffen [61].
7. Die Weberzahl der Tropfen sollte hoch liegen, um ein Abprallen der Tropfen weitestgehend zu verhindern und so eine hohe Verdampfungseffektivität zu gewährleisten.

3 Theorie und Modelle der numerischen Strömungsmechanik

Die numerische Strömungsmechanik (*computational fluid dynamics*, CFD) ermöglicht die Untersuchung von Wärme- und Stofftransportvorgängen in vielfältigen technischen Anwendungen, ohne den großen Aufwand bei klassischer Vorgehensweise und ohne die hohen Kosten einer rein experimentellen Herangehensweise. Im Rahmen der vorgestellten Methodik dieser Arbeit bilden CFD-Simulationen ein wichtiges Werkzeug zur Reaktorauslegung. Im folgenden Kapitel werden die theoretischen Grundlagen der numerischen Strömungsmechanik hergeleitet. Analog zu den in Kapitel 2 diskutierten physikalischen Phänomenen, werden die zur Modellierung der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung erforderlichen CFD-Modelle diskutiert. Die CFD-Simulationen dieser Arbeit wurden mit Hilfe des Programmpakets FLUENT von Ansys Inc. erstellt.

3.1 Allgemeine Aufgabenbeschreibung

Ziel dieser Arbeit ist die vollständige strömungsmechanische Beschreibung des im vorangegangenen Kapitel vorgestellten Brenngaserzeugungssystems. Anhand der Grundkonzepte des Systems und der einzelnen Reaktoren lassen sich vier Hauptanforderungen an die numerische Modellierung identifizieren:

1. die grundlegende Modellierung von Einphasenströmungen und Wärmeübergängen, darin eingeschlossen die Modellierung von Turbulenz, Stoffgemischen, porösen Medien und Wärmestrahlung,
2. die Modellierung von chemischen Reaktionen mit besonderem Augenmerk auf Gleichgewichts- und Oberflächenreaktionen,
3. die Modellierung von Mehrphasenströmungen mit besonderem Augenmerk auf Tropfenströmungen im Zweiphasensystem Nassdampf und der Tropfeneinspritzung,
4. die Modellierung von Phasenübergangsphänomenen, mit einem Schwerpunkt auf Oberflächenphänomenen.

Die Basis der unter Punkt 1 definierten grundlegenden Modellierungsansätze bildet hierbei größtenteils die zugrunde liegende Modellbibliothek der Arbeiten von Z. Porš [16]. Neben der Weiterführung und Modifikation dieser grundlegenden Modellierungsansätze werden im Rahmen dieser Arbeit Methoden und Modelle zu den in den Punkten 2 bis 4 definierten Hauptanforderungen entwickelt und angewendet. Parallel zum theoretischen Modellansatz werden dabei vielfältige Experimente zur Bestimmung von Modellparametern und zur Validierung der Modelle und Simulationsrechnungen durchgeführt.

3.2 Integrale und differentielle Bilanzierung von allgemeinen Erhaltungsgrößen

Die Grundlage der Beschreibung und der numerischen Berechnung realer technischer Prozesse ist die Modellbildung, im Besonderen die Bilanzierung von Erhaltungsgrößen in Eulerscher Betrachtungsweise in einem Feldkonzept. Die folgende Herleitung der Grundgleichungen basiert auf dem allgemeinen Ansatz zur Bilanzierung einer Erhaltungsgröße nach [62, 63]. Die integrale Bilanzierung einer allgemeinen Erhaltungsgröße ψ in einem Bilanzierungselement V mit den Seitenflächen S liefert:

$$\underbrace{\frac{\partial}{\partial t} \int_{V(t)} \psi dV}_{\text{Akkumulation}} = - \underbrace{\int_{S_k} (\psi \vec{v} \cdot d\vec{A}) - \int_S (\vec{\phi}_\psi \cdot d\vec{A})}_{\text{Transport}} + \underbrace{\int_V (\sigma_\psi^P + \sigma_\psi^F) dV}_{\text{Quellen/Senken}} = \frac{\partial \Psi}{\partial t}. \quad (3.1)$$

Die Akkumulation ist die zeitliche Ableitung der gesamten im Bilanzierungselement gespeicherten Menge der Erhaltungsgröße ψ . Der Transportterm beinhaltet den konvektiven Anteil ψ, \vec{v} mit dem Strömungsvektor \vec{v} sowie eine verallgemeinerte Leitung $\vec{\phi}_\psi$. Die Flächen S_k sind hierbei die für einen konvektiven Strom durchlässigen Seiten des Bilanzelements. Der Quellterm setzt sich zusammen aus der Produktionsdichte im Inneren des Bilanzelements σ_ψ^P und aus der Zufuhrdichte σ_ψ^F . Dabei berücksichtigt σ_ψ^F die Feineffekte externer Felder. Entsprechend ergibt die differentielle Bilanzierung der allgemeinen Erhaltungsgröße ψ nach Umwandlung der Oberflächenintegrale in Volumenintegrale nach dem Gaußschen Satz:

$$\underbrace{\frac{\partial \psi}{\partial t}}_{\text{Akkumulation}} + \underbrace{(\vec{\nabla} \cdot \psi \vec{v})}_{\text{Konvektion}} + \underbrace{(\vec{\nabla} \cdot \vec{\phi}_\psi)}_{\text{verallg. Leitung}} = \underbrace{\sigma_\psi^P}_{\text{Produktionsdichte}} + \underbrace{\sigma_\psi^F}_{\text{Zufuhrdichte}}. \quad (3.2)$$

3.3 Grundgleichungen der numerischen Strömungsmechanik

3.3.1 Erhaltungsgleichungen

Aus der allgemeinen differentiellen Bilanz (3.2) lassen sich die Erhaltungsgleichungen der Masse, des Impulses und der Energie in einer homogenen Phase ableiten. Für den Massenerhalt (Kontinuitätsgleichung) ergibt sich:

$$\underbrace{\frac{\partial (\rho)}{\partial t}}_{\text{Akkumulation}} + \underbrace{(\vec{\nabla} \cdot \rho \vec{v})}_{\text{Konvektion}} = \underbrace{S_m}_{\text{allg. Quellterm}}. \quad (3.3)$$

S_m repräsentiert hierbei einen allgemeinen Massenquellterm. Die Impulsbilanz entspricht dabei dem zweiten newtonschen Gesetz [64]:

$$\underbrace{\frac{\partial(\rho \vec{v})}{\partial t}}_{\text{Akkumulation}} + \underbrace{\left(\vec{\nabla} \cdot \rho \vec{v} \vec{v}\right)}_{\text{Konvektion}} + \underbrace{\left(\vec{\nabla} \cdot \bar{\bar{\Pi}}\right)}_{\text{Dissipation}} = \underbrace{\sum_i \rho_i \vec{f}_i}_{\text{Zufuhrdichte Feldkraefte}}. \quad (3.4)$$

Der Spannungstensor $\bar{\bar{\Pi}}$ beschreibt den Einfluss des molekularen Impulstransports. In der Zufuhrdichte stellen die \vec{f}_i externe Feldkräfte, wie z.B. die Gravitation dar. Die Bilanz der Gesamtenergie e als Summe der potentiellen, der inneren und der kinetischen Energie liefert nach Gleichung (3.2):

$$\begin{aligned} \underbrace{\frac{\partial(\rho e)}{\partial t}}_{\text{Akkumulation}} + \underbrace{\left(\vec{\nabla} \cdot \rho e \vec{v}\right)}_{\text{Konvektion}} + \underbrace{\vec{\nabla} \cdot \left(\underbrace{\vec{q}}_{\text{Leitung}} + \underbrace{\sum_i \vec{j}_i h_i}_{\text{Diffusion}} + \underbrace{\bar{\bar{\Pi}} \cdot \vec{v}}_{\text{Dissipation}} \right)}_{\text{Transport}} &= \underbrace{\sum_i (\varphi_i r_i^V)}_{\text{Produktionsdichte Reaktionen}} + \underbrace{\sum_i \rho_i \sigma_i}_{\text{Feldeffekte}} + \underbrace{\sum_i \left(\rho_i \frac{\partial \varphi_i}{\partial t} \right)}_{\text{Zufuhrdichte Potential}}. \end{aligned} \quad (3.5)$$

Der Energietransport erfolgt hierbei durch die Wärmeleitung \vec{q} , die Dissipation $\bar{\bar{\Pi}} \cdot \vec{v}$ und die diffusiven Enthalpieströme $\vec{j}_i h_i$ (Enthalpietransport durch diffusive Stoffströme). Die Zufuhrdichte setzt sich zusammen aus der Wärmestrahlung (σ_i : Energiequellldichte) und einer Änderung der potentiellen Energie (φ_i : Potential der Komponente i). Die Produktionsdichte beinhaltet Effekte chemischer Reaktionen (r_i^V : massenbezogene Reaktionsgeschwindigkeit der Komponente i).

3.3.2 Navier-Stokes und Euler Gleichungen

Aus den Erhaltungsgleichungen der Masse, des Impulses und der Energie lassen sich die Grundgleichungen der numerischen Strömungsmechanik, die sogenannten Navier-Stokes Gleichungen, herleiten. Diese Gleichungen bilden auch die Basis der CFD-Modellierung mit FLUENT [65].

In der Impulsbilanz setzt sich $\bar{\bar{\Pi}}$, der Tensor der verallgemeinerten Impulsleitung (Spannungstensor), aus dem viskosen Spannungstensor $\bar{\bar{\tau}}$ und dem thermodynamischen Druck $p \cdot I$ zusammen:

$$\bar{\bar{\Pi}} = pI - \bar{\bar{\tau}} = pI - \left[\eta \left(\vec{\nabla} \vec{v} + \left(\vec{\nabla} \vec{v} \right)^T \right) + \lambda \nabla \cdot \vec{v} I \right]. \quad (3.6)$$

Entsprechend dem Newtonschen Elementargesetz der Zähigkeitsspannung sind η und λ Proportionalitätsfaktoren für die Dynamische- bzw. die Scherviskosität [66]. Nach der Hypothese von Stokes [67] wird in der Regel der für einatomige Gase gültige Zusammenhang

$$\lambda = -\frac{2}{3}\eta \quad (3.7)$$

verwendet. Unter Berücksichtigung der Gravitation und anderer externer Feldkräfte \vec{F} ergibt sich:

$$\frac{\partial(\rho \vec{v})}{\partial t} + (\vec{\nabla} \cdot \rho \vec{v} \vec{v}) = -\vec{\nabla} p + \vec{\nabla} \cdot (\vec{\tau}) + \rho \vec{g} + \vec{F}. \quad (3.8)$$

Die Kontinuitätsgleichung (3.3) und die Impulserhaltung (3.8) bilden die Navier-Stokes Gleichungen für ein einphasiges Einkomponentensystem. Diese werden um die Energieerhaltung erweitert:

$$\frac{\partial(\rho e)}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\vec{v}(\rho e + p)) = \vec{\nabla} \cdot \left(k \vec{\nabla} T - \sum_i \vec{j}_i h_i + (\vec{\tau} \cdot \vec{v}) \right) + S_h. \quad (3.9)$$

Dabei beschreibt k die thermische Leitfähigkeit und S_h repräsentiert einen allgemeinen Energiequellterm.

Im Falle einer nichtviskosen reibungsfreien Strömung gilt $\eta = 0$, so dass sich die Navier-Stokes Gleichungen zu den Euler Gleichungen vereinfachen.

3.3.3 Solver Theorie

Bis heute konnte die Existenz und Regularität von globalen Lösungen der dreidimensionalen Navier-Stokes Gleichungen für die Strömung inkompressibler Medien ((3.3) und (3.8)) nicht nachgewiesen werden. Dieses ungelöste mathematische Problem wurde im Jahr 2000 vom Clay Mathematics Institute (CMI) in Cambridge in die Liste der Millennium-Probleme aufgenommen [68].

Zur Lösung der Navier-Stokes Gleichungen werden numerische Verfahren verwendet. Dazu wird das mathematische Problem diskretisiert indem es in Raum und Zeit in endlich viele Teile zerlegt wird [64, 69, 70]. Innerhalb dieser Teile werden die Ableitungen der Differentialgleichungen durch Differenzen approximiert, so dass rein algebraische Ausdrücke entstehen, die mittels numerischer Verfahren gelöst werden können. In der numerischen Strömungsdynamik wird in der Regel das Finite-Volumen-Verfahren als Diskretisierungsansatz der Navier-Stokes Gleichungen verwendet. Dabei wird die Geometrie eine endliche (finite) Menge an Kontrollvolumen unterteilt, an deren Mittelpunkt die physikalischen Größen liegen. Bei der Berechnung wird das Volumenintegral über die ganze Zelle gebildet und mit Hilfe des Gaußschen Integralsatzes in Oberflächenintegrale umgewandelt [70]. Die Beschreibung eines Strömungsverhaltens durch viele ortsfeste Kontrollvolumina entspricht hierbei der feldbasierten Eulerschen Strömungsbeschreibung. Gerade bei instationären Systemen ist es ratsam eine adaptive Diskretisierung durchzuführen. Hierbei wird das Gitter an den Stellen im System, an denen ein

großer Gradient der Strömungseigenschaften erwartet wird, besonders fein gewählt. Dies kann entweder durch a-priori Wissen oder, anhand von Gradienten, durch dynamische Verfahren geschehen. Die Methoden und Richtlinien zur Netzgenerierung im Rahmen dieser Arbeit, basieren auf [70–72]. In der Regel wird zur Erreichung einer schnellen Konvergenz der Lösung mit einem Diskretisierungsschema 1. Ordnung begonnen und erst zum Ende der Iteration hin ein Diskretisierungsschema 2. Ordnung gewählt.

Die Navier-Stokes Gleichungen bilden ein System nichtlinearer gekoppelter Differentialgleichungen. In diesem System bilden die Impulsgleichungen Bestimmungsgleichungen der Geschwindigkeitskomponenten. Die Kontinuitätsgleichung ist für inkompressible Medien mit konstanter Dichte keiner Variabel zugeordnet. Somit enthält das System keine Bestimmungsgleichung für den Druck, obwohl dieser alle Impulsgleichungen (siehe Gleichung (3.8)) direkt beeinflusst. Zur Bestimmung des Druckes oder einer Druckkorrektur wird das Navier-Stokes Gleichungssystem durch einen Koppelalgorithmus (*pressure-velocity coupling*) geschlossen [70].

Die Lösung des diskretisierten Gleichungssatzes kann mittels druck- (*pressure-based*, PB) oder dichtebasierter (*density-based*, DB) Solver erfolgen, die sich in der Abfolge der einzelnen Lösungsschritte unterscheiden. Für inkompressible Strömung ($Ma < 0,3$), sind druckbasierte Solver zu bevorzugen. Der sogenannte *segregated solver* (*pressure-based*, PB) löst zunächst nacheinander die drei Impulsgleichungen, anschließend die Kontinuitätsgleichung und abschließend, nach der Aktualisierung des Geschwindigkeitsvektors, die weiteren Modellgleichungen. Beim *pressure-based-coupled solver* (PBCS) werden hingegen die Impuls- und die Kontinuitätsgleichungen gleichzeitig gelöst und der Geschwindigkeitsvektor erst nach dem abgeschlossenen Iterationsschritt aktualisiert.

3.3.4 Parallel Processing / HPC

Um besonders rechenintensive CFD-Modelle in einem vertretbaren Zeitaufwand zu simulieren, wird das Problem in Teilprobleme unterteilt und parallel auf mehreren Kernen berechnet. Im Forschungszentrum Jülich steht zum *parallel processing* solcher rechenintensiver CFD-Modellierungen der Höchstleistungsrechner (*high performance computer*, HPC) JuRoPA (*Jülich Research on Petaflop Architectures*) zur Verfügung. Dieser Supercomputer ist für besonders datenintensive Anwendungen optimiert und besteht aus 2208 Rechenknoten mit insgesamt 17664 Kernen und einer Gesamtrechenleistung von 207 Teraflop/s [73]. Zur Parallelisierung wird das Netz in Teilgeometrien zerlegt. Bei der Berechnung wird jede Partition einem Rechenknoten zugeordnet. Die Schnittstellen zwischen den Teilgeometrien sind als *interfaces* definiert. Ein *interface* ist eine interne Randbedingung zur Verknüpfung zwischen zwei Netzpartitionen. Masse, Impuls und Turbulenz werden über eine Interface hinweg erhalten. Dieser Datenaustausch über das *interface* erfolgt beim *parallel processing* zwischen zwei Rechenknoten. Der Datentransfer beschränkt die Skalierbarkeit der Parallelisierung, da bei zu kleinen Partitionen der Zeitaufwand der Datenkommunikation dominiert. Als Richtwert wird eine minimale Partitionsgröße von 100.000 Zellen angegeben [74]. Eine Parallelisierung stellt also hohe Anforderungen an die Datenkommunikation um den Austausch der Daten zeitverlustarm zu ermöglichen. Der Supercomputer JuRoPA ist hinsichtlich seines Arbeitsspeichers und der Datenkommunikation optimiert. Er bietet also gut Voraussetzungen zur Berechnung komplexer und vor allem

geometrisch großer CFD-Modelle. In [17] wird am Fallbeispiel eines autothermen Reformers die CFD-gestützte Entwicklungsmethodik in Bezug auf den Einsatz von HPC-Rechenkapazitäten diskutiert.

3.4 Physikalische Modellgrundlagen

Zur vollständigen Beschreibung eines realen technischen Strömungsproblems wird der Gleichungssatz der zugrundeliegenden Navier-Stokes Gleichungen durch entsprechende physikalische Teilmodelle erweitert. Die Auswahl und die Entwicklung der Teilmodelle beeinflusst dabei entscheidend die Genauigkeit der CFD-Simulationen. Die im Folgenden vorgestellten physikalischen Modellgleichungen entstammen oder basieren auf, wenn nicht anders ausgezeichnet, der FLUENT Modellbibliothek [65], [72].

3.4.1 Turbulenz

Turbulente Strömungen haben einen stark instationären chaotischen Charakter. Die Modellierung dieses unregelmäßigen und nicht-vorhersagbaren Strömungsverhaltens ist eine der größten Herausforderungen in der Strömungssimulation. Direkte numerische Simulationen (DNS) stellen eine vollständige Lösung der instationären Navier-Stokes Gleichungen dar. Um auch die kleinskaligsten turbulenten Strömungsstrukturen aufzulösen, erfordern die DNS eine sehr feine Vernetzung mit $d_{\text{Zelle}} < d_{\text{Turbulenz, min}}$ und eine sehr kurze Zeitschrittweite $t < t_{\text{Turbulenz, min}}$, was zu einem hohen Rechenaufwand führt und nur für einfache Strömungen mit niedrigen Reynoldszahlen möglich ist. In der technischen Praxis sind vor allem makroskopische Strömungsphänomene von Interesse, so dass in der Regel statistische Turbulenzmodelle zur Beschreibung von turbulenten Strömungsphänomenen verwendet werden. Einen allgemeinen Modellierungsansatz hierzu bietet die Reynoldssche Zerlegung [63, 66]. Hierbei werden die Strömungsvariablen $\psi(t)$ in einen gemittelten Term $\bar{\psi}$ und eine diesen überlagernde statistische Störbewegung $\psi'(t)$ unterteilt:

$$\psi(t) = \bar{\psi} + \psi'(t). \quad (3.10)$$

Durch Einsetzen der Reynoldsschen Zerlegungen (3.10) für Geschwindigkeit und Druck in die Navier-Stokes Gleichungen (3.8) und anschließender zeitlicher Mittelung ergibt sich in einem inkompressiblen System:

$$\frac{\partial (\rho \bar{v})}{\partial t} + \left(\vec{\nabla} \cdot \rho \bar{v} \bar{v} \right) + \left(\vec{\nabla} \cdot \rho \overline{v'v'} \right) = -\vec{\nabla} \bar{p} + \vec{\nabla} \cdot (\bar{\tau}) + \rho \bar{g} + \bar{F}. \quad (3.11)$$

Hierbei ist zu beachten, dass die zeitliche Mittelung der Schwankung $\psi'(t)$ verschwindet, die zeitliche Mittelung des Produktes zweier Schwankungsgrößen $\overline{\psi'\psi'}$ im Allgemeinen jedoch nicht. Die Navier-Stokes Gleichungen für gemittelte Strömungsgrößen (3.11) (*reynolds-averaged Navier-Stokes*, RANS) enthalten die sogenannte Reynoldsspannung als makroskopischen Einfluss der Turbulenz:

$$\bar{\bar{R}} = - \left(\vec{\nabla} \cdot \overline{\rho \vec{v}' \vec{v}'} \right). \quad (3.12)$$

Die RANS bilden ein nicht geschlossenes Gleichungssystem. Eine gängige Methode zur Schließung des Gleichungssystems bieten Wirbelviskositätsmodelle. In diesen wird die Reynoldsspannung nach der Hypothese von Boussinesq approximiert, analog zu den durch die molekulare Viskosität hervorgerufenen Spannungen $\bar{\tau}$ (vgl. Gleichung (3.6)):

$$\bar{\bar{R}} = - \left(\vec{\nabla} \cdot \overline{\rho \vec{v}' \vec{v}'} \right) = \eta_t \left(\vec{\nabla} \vec{v} + \left(\vec{\nabla} \vec{v} \right)^T \right) - \frac{2}{3} \left(\rho_k + \eta_t \vec{\nabla} \cdot \vec{v} \right). \quad (3.13)$$

Die turbulente Viskosität η_t beschreibt hierbei einen zusätzlichen Viskositätsterm, der durch turbulente Schwankungsbewegungen entsteht. Wirbelviskositätsmodelle werden nach der Anzahl der unabhängigen Turbulenzvariablen zur Bestimmung von η_t in Null-, Ein- und Zweigleichungsmodelle unterschieden. Ein in der Praxis weit verbreitetes Zweigleichungsmodell ist das Standard- k - ε -Modell (ske-Modell), das einen guten Kompromiss zwischen Genauigkeit und Rechenaufwand darstellt. Die turbulente Viskosität η_t wird hier mithilfe der turbulenten kinetischen Energie k und deren Dissipationsgrad ε als weiteren unabhängigen Turbulenzvariablen beschrieben (3.14).

$$\eta_t = \rho C_\eta \frac{k^2}{\varepsilon}, \quad k = \frac{\overline{v'^2 v'^2}}{2}. \quad (3.14)$$

Die Konstante C_η wird experimentell bestimmt. Zur Schließung des Gleichungssystems werden nach der allgemeinen Gleichung (3.2) die Erhaltungsgleichungen für k und ε formuliert:

$$\frac{\partial (\rho k)}{\partial t} + \left(\vec{\nabla} \cdot \rho k \vec{v} \right) = \vec{\nabla} \cdot \left(\left(\eta + \frac{\eta_t}{\sigma_k} \right) \vec{\nabla} k \right) + G_k + G_b - \rho \varepsilon - Y_M + S_k, \quad (3.15)$$

$$\frac{\partial (\rho \varepsilon)}{\partial t} + \left(\vec{\nabla} \cdot \rho \varepsilon \vec{v} \right) = \vec{\nabla} \cdot \left(\left(\eta + \frac{\eta_t}{\sigma_\varepsilon} \right) \vec{\nabla} \varepsilon \right) + C_{1\varepsilon} \frac{\varepsilon}{k} (G_k + C_{3\varepsilon} G_b) - C_{2\varepsilon} \rho \frac{\varepsilon^2}{k} + S_\varepsilon. \quad (3.16)$$

Dabei sind $C_{1\varepsilon}$ und $C_{2\varepsilon}$ Konstanten, σ_k und σ_ε turbulente Prandtlzahlen für k bzw. ε und S_k und S_ε benutzerdefinierte Quellen. Y_M repräsentiert den Effekt der Kompressibilität und G_b den Effekt des Auftriebs. Experimentell ermittelte Standardwerte für die Konstanten des ske-Modells sind: $C_{1\varepsilon} = 1,44$; $C_{2\varepsilon} = 1,92$; $\sigma_k = 1,0$; $\sigma_\varepsilon = 1,3$; $C_\eta = 0,09$.

Reibungsbehafteten Strömungen bilden durch die Haftbedingung in Wandnähe Grenzschichten aus. Die Hauptströmung wird durch die Haftbedingungen wesentlich beeinflusst. In einer Strömung mit hohen Reynoldszahlen und endlicher Zähigkeit lässt sich die Grenzschicht in 3 Schichten unterteilen [75]. Nach dem universellen Wandgesetz ergibt sich für die Geschwindigkeitsverteilung in Abhängigkeit eines dimensionslosen Wandabstands [63, 65, 76]:

1. $y^+ = 0$ bis 5 reinviskose Unterschicht (*viscous sublayer*),
2. $y^+ = 5$ bis 60 Übergangsschicht (*buffer layer*),
3. $y^+ > 60$ Überlappungsschicht.

Der dimensionslose Wandabstand y^+ wird dabei nach Gleichung (3.17) aus dem normalen Wandabstand y , der Wandschubspannungsgeschwindigkeit U_τ und der Strömungsgeschwindigkeit v berechnet.

$$y^+ = \frac{y U_\tau}{v}, \text{ mit: } U_\tau = \sqrt{\frac{\tau_w}{\rho}}. \quad (3.17)$$

Die ke-Modelle sind nicht geometrieabhängig. Daher müssen die Strömungseffekte in den Grenzschichten über weiterführende Modelle berücksichtigt werden. Hierzu stehen zwei Ansätze zur Verfügung:

1. Die wandnahe Grenzschicht lässt sich durch den Einsatz eines Low-Re Modells genau auflösen. Low-Re Modelle erweitern die Gültigkeit der Turbulenzmodelle durch die Einführung einer zusätzlichen geometrieabhängigen Dämpfungsfunktion der Turbulenz bis an die Wand. Die Auflösung der Wandeffekte erfordert eine sehr feine Vernetzung im Bereich der Grenzschicht. Die Zentren der ersten wandnahen Volumenelemente müssen in der viskosen Unterschicht liegen. Für den dimensionslosen Wandabstand gilt $y^+ \approx 1$. Als minimale Auflösungsgenauigkeit wird eine Höhe von 10 Zellen für den inneren Bereich der rein viskosen Schicht und der Übergangsschicht angegeben. Die Auflösung und Berechnung der wandnahen Grenzschicht mit einem *low-Re* Modell bedeutet somit einen erhöhten Rechenaufwand. Mit steigender Turbulenz sinkt die Höhe der Grenzschicht, wodurch die Effizienz in der Beschreibung des wandnahen Bereichs weiter abnimmt.
2. Eine weitere Möglichkeit zur Modellierung des wandnahen Strömungsgebiets ist der Einsatz von Standard-Wandfunktionen. Standard-Wandfunktionen berechnen die Beziehung zwischen Wandabstand und Geschwindigkeit über ein logarithmisches Wandgesetz. Die Feinheit der Vernetzung wird so gewählt, dass die erste wandnahe Zelle die Grenzschicht umfasst. Der logarithmische Verlauf der Geometrieabhängigkeit wird auf diese erste Gitterzelle senkrecht zur Wand übertragen. Das Modell überbrückt so die hohen Geschwindigkeitsgradienten der viskosen Unterschicht und des Übergangsbereichs. Mit dem Einsatz der Wandfunktion entfällt die bei dem *low-Re*-Modell notwendige feine Vernetzung in der Grenzschicht, wodurch sich die Rechenzeit stark reduziert.

Das ske-Modell liefert gute Ergebnisse für einfache Strömungen, offenbart jedoch zwei Schwachstellen bei der Berechnung komplexer Strömungssysteme. Zum einen kann bei bestimmten Strömungsphänomenen, beispielsweise an Stellen hoher Beschleunigung oder Verzögerung, der Spannungstensor nach Gleichung (3.13) negativ werden, was den Bedingungen der Boussinesq-Approximation widerspricht. Zum anderen wird der Wert C_η in Gleichung (3.14), der eine Funktion des Strömungsfeldes und der Turbulenz ist, vereinfachend als konstant angenommen. Somit wird die turbulente Viskosität in allen Raumrichtungen gleich groß berechnet, so

dass das ske-Modell nur eine isotrope Beschreibung der Turbulenz ermöglicht. Eine verbesserte Darstellung der Strömungen in komplexen Systemen ermöglicht das Realizable-k- ε -Modell (rke-Modell). Dieses modifizierte ske-Modell basiert auf der Einführung von Einschränkungen des Reynolds-Spannungstensors (3.13) und der Berechnung von C_η als Funktion des Strömungsfeldes und der Turbulenz. Dadurch ergibt sich folgende geänderte Erhaltungsgleichung des Dissipationsgrades ε :

$$\begin{aligned} & \frac{\partial(\rho \varepsilon)}{\partial t} + (\vec{\nabla} \cdot \rho \varepsilon \vec{v}) \\ &= \vec{\nabla} \cdot \left(\left(\eta + \frac{\eta_t}{\sigma_\varepsilon} \right) \vec{\nabla} k \right) + \rho C_1 S_\varepsilon - \rho C_2 \frac{\varepsilon^2}{k + \sqrt{\nu \varepsilon}} + C_{1\varepsilon} \frac{\varepsilon}{k} C_{3\varepsilon} G_b + S_\varepsilon. \end{aligned} \quad (3.18)$$

Einen Kompromiss zwischen der genauen Auflösung turbulenter Strömungsphänomene durch DNS und den einfach zu berechnenden Wirbelviskositätsmodellen stellen die *large eddy simulations* (LES) dar. Durch eine zeitliche und räumliche Tiefpassfilterung werden großskalige turbulente Strömungsphänomene instationär und orts aufgelöst berechnet, während die kleinskaligen turbulenten Strömungsphänomene mit Turbulenzmodellen modelliert werden. Dadurch liefert die LES bei höherem Rechenaufwand eine bessere Beschreibung der turbulenten Strömungsphänomene als die rein statistischen Methoden. Durch Strömungsvisualisierungsversuche und vergleichende Simulationen mit unterschiedlichen Turbulenzmodellen (LES) konnte Z. Porš zeigen, dass das ske-Modell die turbulenten Strömungsphänomene in den Reaktoren der Brenngaserzeugung hinreichend beschreibt. Durch die Berücksichtigung anisotroper Phänomene ist anzunehmen, dass das rke-Modell die Beschreibung der Turbulenz weiter verbessert.

3.4.2 Wärmeübertragung

Unter Berücksichtigung der diskutierten Turbulenz zeigt die Bilanz der Gesamtenergie (3.9) die drei Wärmeübertragungsmechanismen Konvektion, Leitung und Strahlung:

$$\frac{\partial(\rho e)}{\partial t} + \underbrace{\vec{\nabla} \cdot (\vec{v}(\rho e + p))}_{\text{Konvektion}} = \vec{\nabla} \cdot \left(\underbrace{k_{\text{eff}} \vec{\nabla} T}_{\text{Leitung}} - \underbrace{\sum_i \vec{j}_i h_i}_{\text{Diffusion}} + \underbrace{(\overline{\tau_{\text{eff}}} \cdot \vec{v})}_{\text{Dissipation}} \right) + \underbrace{\sum_i \rho_i \sigma_i + S_h}_{\text{Feldeffekte}}. \quad (3.19)$$

Die Gesetzmäßigkeiten der Konvektion und der Wärmeleitung sind direkt in Gleichung (3.19) enthalten, die Wärmestrahlung hingegen erfordert ein zusätzliches Strahlungsmodell und wird über die Energiequellldichte σ_i oder einen zusätzlichen Quellterm berücksichtigt. Die Terme k_{eff} und $\overline{\tau_{\text{eff}}}$ beschreiben die effektive Leitfähigkeit bzw. den effektiven Spannungstensor und setzen sich aus einem laminaren und einem turbulenten Anteil zusammen. Die weiteren Produktions- und Zufuhrdichten sind in Gleichung (3.19) vereinfachend im Energiequellterm S_h zusammengefasst.

Zur Beschreibung der Wärmeübertragung durch Strahlung stehen verschiedene Modellierungsansätze zur Verfügung [76]. Wegen seiner Eignung für den gesamten Bereich der optischen Dichte und wegen des vertretbaren Rechenaufwands wird in dieser Arbeit das *discrete-ordinates* Model (DO-Modell) verwendet. Das DO-Modell verfolgt im Gegensatz zu anderen Strahlungsmodellen, nicht einzelne Wärmestrahlen, sondern löst die Transportgleichung für die Strahlungsintensität in den diskreten Richtungen. Dazu wird im DO-Modell die Strahlungsübertragungsgleichung (*radiative transfer equation*, RTE) in Vektorschreibweise formuliert:

$$\nabla \cdot (I(\vec{r}, \vec{s}) \vec{s}) + (a + \sigma_S) I(\vec{r}, \vec{s}) = a n^2 \frac{\sigma T^4}{\pi} + \frac{\sigma_S}{4\pi} \int_0^{4\pi} I(\vec{r}, \vec{s}') \Phi(\vec{s} \cdot \vec{s}') d\Omega'. \quad (3.20)$$

Hierbei ist I die Strahlungsintensität in Abhängigkeit von der Position \vec{r} und der Richtung \vec{s} , \vec{s}' der Richtungsvektor der Streuung, s die Pfadlänge, α der Absorptionskoeffizient, n der Brechungsindex, σ_S die Streukoeffizient, σ die Stefan-Boltzmann-Konstante, T die lokale Temperatur, Φ die Phasenfunktion und Ω' der Raumwinkel.

Der kartesische Raum wird im DO-Modell durch eine beliebige Anzahl von Ordinaten in diskrete Kontrollwinkel, mit den zugehörigen Richtungsvektoren \vec{s}_i , aufgeteilt. Die Winkelabschnitte werden wiederum in ein Raster aus einzelnen Pixeln unterteilt. Die RTE-Gleichung wird für jede einzelne Richtung \vec{s}_i gelöst. Die Genauigkeit der Rechnung steigt dabei mit der Anzahl der Ordinaten und Pixel.

3.4.3 Stoffgemische und Reaktionen

Das Species Modell dient in Fluent zur Beschreibung von Stoffgemischen. Dabei werden für N-1 Komponenten eines Gemischs jeweils Massenerhaltungsgleichungen unter Berücksichtigung der Konvektion, der Diffusion, und der Reaktionen berechnet. Die Masse der Komponente N ergibt sich aus der Schließbedingung. Dieser Ansatz ermöglicht die Modellierung von volumetrischen Reaktionen, Oberflächenreaktionen und Reaktionen an Phasengrenzen.

Zur Betrachtung von einphasigen Stoffgemischen lässt sich die Massenerhaltungsgleichung einer Komponente i formulieren:

$$\underbrace{\frac{\partial (Y_i \rho)}{\partial t}}_{\text{Akkumulation}} + \underbrace{(\vec{\nabla} \cdot Y_i \rho \vec{v})}_{\text{Konvektion}} + \underbrace{(\vec{\nabla} \cdot \vec{j}_i)}_{\text{Diffusion}} = \underbrace{r_i^V}_{\text{Reaktionen}} + \underbrace{S_i^m}_{\text{allg. Quellterm}}. \quad (3.21)$$

Hierbei ist Y_i der lokale Massenanteil, \vec{j}_i der Diffusionsmassenstrom und r_i^V die massenbezogene Reaktionsgeschwindigkeit der Komponente i . S_i beschreibt sonstige Quellen der Komponente. Der Term der Diffusion basiert dabei in der Regel auf den Fick'schen Gesetzen:

$$\vec{j}_i = - \left(\rho D_{i,m} + \frac{\eta_t}{Sc_t} \right) \vec{\nabla} Y_i - D_{T,i} \frac{\vec{\nabla} T}{T}, \text{ mit der Schmidtzahl } Sc_t = \frac{\eta_t}{\rho D_t}. \quad (3.22)$$

$D_{i,m}$ ist hierbei der Massendiffusionskoeffizient und $D_{T,i}$ der thermische Diffusionskoeffizient der Komponente i des Gemischs. Der turbulente Term η_t/Sc_t entfällt bei einer laminaren Strömung.

Der massenbezogene Netto-Quellterm der Komponente i in Folge chemischer Reaktionen r_i ergibt sich nach Gleichung 2.14 aus der molaren Masse der Komponente und der Summe der Stoffmengenänderungsgeschwindigkeiten der Einzelreaktionen $R_{i,r}$.

$$r_i = M_{w,i} \sum_{r=1}^{N_R} R_{i,r}. \quad (3.23)$$

Die Geschwindigkeitskonstante der Hin-Reaktion $k_{f,r}$ wird nach dem Ansatz von Arrhenius in Gleichung (2.16) berechnet. Die Stoffmengenänderungsgeschwindigkeit einer Komponente i in einer reinen Hin-Reaktion wird nach Gleichung (3.24) berechnet:

$$R_{i,r} = \Gamma (\nu''_{i,r} - \nu'_{i,r}) \left(k_{f,r} \prod_{j=1}^N [C_{j,r}]^{(\eta'_{j,r} + \eta''_{j,r})} \right). \quad (3.24)$$

Dabei ist $C_{i,j}$ die molare Konzentration der Komponenten j in der Reaktion und $\eta_{j,r}$ der Exponent der Reaktionsordnung für Hin- und Rückreaktion. Γ repräsentiert den Einfluss von reaktionsfremden Körpern (*third bodies*). Für eine Gleichgewichtsreaktion ergibt sich die Stoffmengenänderungsgeschwindigkeit aus:

$$R_{i,r} = \Gamma (\nu''_{i,r} - \nu'_{i,r}) \left(k_{f,r} \prod_{j=1}^N [C_{j,r}]^{(\eta'_{j,r})} - k_{b,r} \prod_{j=1}^N [C_{j,r}]^{(\nu''_{j,r})} \right) \quad (3.25)$$

Hierbei ist zu beachten, dass die Exponenten der Reaktionsordnung der Rückreaktion mit den stöchiometrischen Koeffizienten der Komponenten j im Produkt übereinstimmen. Die Geschwindigkeitskonstante der Rückreaktion wird, wie im allgemeinen Theorieteil gezeigt, mit Hilfe der Gleichgewichtskonstante bestimmt.

$$k_{b,r} = \frac{k_{f,r}}{K_r}, \text{ mit: } K = K_r \left(\frac{RT}{p_0} \right)^{\sum \nu_i} \quad (3.26)$$

$$\Delta G_r^0 = RT \cdot \ln(K), \text{ mit: } G = H - TS \quad (3.27)$$

$$\frac{\Delta S_r^0}{R} = \sum_{i=1}^N (\nu''_{i,r} - \nu'_{i,r}) \frac{S_i^0}{R}, \quad \frac{\Delta H_r^0}{RT} = \sum_{i=1}^N (\nu''_{i,r} - \nu'_{i,r}) \frac{h_i^0}{RT} \quad (3.28)$$

Die Gleichgewichtskonstante K_r lässt sich in einem idealen System (Fugazitätskoeffizienten $\varphi_i = 1$) nach Gleichung (3.26) aus der thermodynamischen Gleichgewichtskonstante K berechnen. Diese wird nach Gleichung (3.27) aus der Änderung der Gibbsschen freien Reaktionsenthalpie ΔG_r^0 bestimmt. Die Gibbssche freie Reaktionsenthalpie lässt sich mit Hilfe der beiden Gleichungen (3.28) aus den bekannten Standardbildungsenthalpien und Standardbildungsentropien der Reaktionsedukte und Produkte berechnen. Für die Gleichgewichtskonstante ergibt sich:

$$K_r = \exp \left(\frac{\Delta S_r^0}{R} - \frac{\Delta H_r^0}{RT} \right) \left(\frac{p_{atm}}{RT} \right)^{\sum_{i=1}^N (\nu''_{i,r} - \nu'_{i,r})}. \quad (3.29)$$

Die in Gleichung (3.24) bis (3.29) beschriebenen Reaktionskinetiken dienen zur Modellierung volumetrischer Reaktionen. In den Reaktoren der Brenngaserzeugung finden jedoch, wie unter 2.1.3 gezeigt, heterogen katalysierte Oberflächenreaktionen statt. Zu deren Modellierung wird in den Erhaltungsgleichungen (3.21) der volumetrische Reaktionsquellterm durch einen flächenbezogenen Quellterm ersetzt.

Die allgemeine Form einer Oberflächenreaktion r berücksichtigt die Komponenten der Gasphase, die an der Oberfläche adsorbierten Komponenten (*site*) und die Materialkomponenten der Oberfläche (*bulk*):

$$\sum_{i=1}^{N_g} g'_{i,r} G_i + \sum_{i=1}^{N_b} b'_{i,r} B_i + \sum_{i=1}^{N_s} s'_{i,r} S_i \xrightleftharpoons{K_r} \sum_{i=1}^{N_g} g''_{i,r} G_i + \sum_{i=1}^{N_b} b''_{i,r} B_i + \sum_{i=1}^{N_s} s''_{i,r} S_i. \quad (3.30)$$

Hierbei repräsentieren G_i , B_i und S_i die jeweiligen Reaktionskomponenten, $g_{i,r}$, $b_{i,r}$ und $s_{i,r}$ sind die stöchiometrischen Koeffizienten und K_r ist die Gleichgewichtskonstante der Reaktion. Die Reaktionsgeschwindigkeit R_r der Reaktion r wird aus der Geschwindigkeitskonstante der Hin-Reaktion $k_{f,r}$ nach Gleichung (2.16), den Konzentrationen der Gasphasen- und an der Oberfläche adsorbierten Komponenten S_j und den Exponenten der Reaktionsordnung der Edukte berechnet:

$$R_r = k_{f,r} \left(\prod_{i=1}^{N_g} [C_i]_{wall}^{\eta'_{i,g,r}} \right) \left(\prod_{j=1}^{N_s} [S_j]_{wall}^{\eta'_{j,s,r}} \right). \quad (3.31)$$

Für eine Komponente i in der Gasphase ergibt sich die Reaktionsgeschwindigkeit $\hat{R}_{i,gas}$:

$$\hat{R}_{i,gas} = \sum_{r=1}^{N_{rxn}} (g''_{i,r} - g'_{i,r}) R_r. \quad (3.32)$$

Die Gleichungen (3.31) und (3.32) enthalten, im Gegensatz zu den Modellen der einer volumetrischen Reaktion nach den Gleichungen (3.24) und (3.25), keinen Term einer Rückreaktion. Somit ist es mit diesem Modell nicht möglich reversible Oberflächenreaktionen abzubilden. Die CFD-Modellierung von Oberflächenreaktionen weicht von den im allgemeinen Theorieteil diskutierten Ansätzen von Langmuir-Hinshelwood und Eley-Rideal ab, da die Stofftransportphänomene unabhängig von der Reaktionskinetik betrachtet werden.

Die genauen Abläufe von heterogen katalysierten Oberflächenreaktionen sind für viele Prozesse nicht hinreichend bekannt. Gleichzeitig führt die vollständige Aufschlüsselung der Oberflächenreaktionen zu komplexen und rechenintensiven Reaktionssystemen. Im Rahmen dieser Arbeit sollen weiterführende Modellierungsansätze zur Darstellung der Oberflächenreaktionen erarbeitet und validiert werden. Als Vereinfachung können in der Modellierung die Stofftransportphänomene vernachlässigt werden. Durch diese Vereinfachung entfällt der Term S_j in Gleichung (3.31). Die Modellierung entspricht in diesem Fall einer reinen volumetrischen Hin-Reaktion

(3.24) unter Vernachlässigung des Exponenten der Reaktionsordnung des Produktes, jedoch mit einem flächigen Quellterm in den Erhaltungsgleichungen. Ein weiterer Ansatz zur Vereinfachung ist die Approximation der homogen im Raum verteilten Oberflächenreaktionen als volumetrische Reaktion. Ein zusätzlicher Vorteil dieser Vereinfachung ist die Darstellbarkeit von Gleichgewichtsreaktionen. Beide Vereinfachungsansätze vernachlässigen den Einfluss von Stofftransportphänomenen auf die Reaktionsgeschwindigkeit. Daher müssen in beiden Ansätzen bei der Ermittlung der Modell-Reaktionskinetiken die Stofftransportvorgänge der Oberflächenreaktion mit berücksichtigt werden. Dies ist aufgrund der Struktur der die Kinetik beschreibenden Gleichungen jedoch nur bedingt möglich, wie ein Vergleich der Gleichungen (3.25) und (3.31)) mit dem Langmuir-Hinshelwood Ansatz zeigt.

3.4.4 Mehrphasenströmung

In einer vollständigen Beschreibung der Mehrphasenströmung werden die Erhaltungsgleichungen für jede einzelne Phase aufgestellt. Dazu wird nach Gleichung (3.2) der Volumenanteil der Phase in der Bilanzierung berücksichtigt. Die Kontinuitätsgleichung ergibt sich somit zu:

$$\frac{\partial (\alpha_i \rho_i)}{\partial t} + (\vec{\nabla} \cdot \alpha_i \rho_i \vec{v}_i) = \sum_j (m_{ji} - m_{ij}) + S_m. \quad (3.33)$$

Hierbei ist α_i der Volumenanteil, ρ_i die Dichte und \vec{v}_i die Geschwindigkeit der Phase i. m_{ij} ist der zusätzliche Quellterm des Phasenübergangs zwischen den Phasen i und j, S_m beschreibt weiterhin eine allgemeine Massenquelle. Aus der Impulsbilanz ergibt sich:

$$\frac{\partial (\alpha_i \rho_i \vec{v}_i)}{\partial t} + (\vec{\nabla} \cdot \alpha_i \rho_i \vec{v}_i \vec{v}_i) = -\alpha_i \vec{\nabla} p + \vec{\nabla} \cdot (\overline{\tau}_i) + \alpha_i \rho_i \vec{g} + \vec{F}. \quad (3.34)$$

Bei der Modellierung der Reaktoren der Brenngaserzeugung werden die Mehrphasenmodelle zur Beschreibung von Tropfensprays von Kerosin und Wasser und zur Beschreibung von Nassdampf benötigt. Beide Mehrphasensysteme bestehen aus einer sehr feinen dispersen Phase, welche in Wechselwirkung mit einer kontinuierlichen Phase als Trägermedium steht. Wichtige Kennzahlen zur Beschreibung disperser Mehrphasensysteme sind die Beladung β und der durchschnittliche Abstand zwischen zwei dispersen Partikeln L :

$$\beta = \frac{m_d}{m_c}, \quad (3.35)$$

$$\frac{L}{d_{Tr}} = \left(\frac{\pi}{6} \frac{1 + \kappa}{\kappa} \right)^{1/3}, \quad \text{mit: } \gamma = \frac{\rho_d}{\rho_c} \text{ und } \kappa = \frac{\beta}{\gamma}. \quad (3.36)$$

Hierbei ist γ das Dichteverhältnis und κ das Volumenverhältnis zwischen disperser und kontinuierlicher Phase. Im Brenngaserzeugungssystem liegt Nassdampf mit einem minimalen Dampfanteil von 50 % vor. Hierfür ergibt sich ein L zu d_{Tr} -Verhältnis von 9,5 und eine Beladung von 1. Aufgrund des großen durchschnittlichen Partikelabstands und der niedrigen Beladung lassen sich die Partikelwechselwirkungen vernachlässigen. Das Trägermedium beeinflusst die Partikel über den Strömungswiderstand und die Turbulenz, die Partikel selbst haben jedoch

keinen Einfluss auf das Trägermedium. Zur Beschreibung eines solchen Systems sind die drei CFD-Modelle *dpm*, *euler* und *mixture* geeignet [76, 77]. Eine exakte Auflösung der Phasengrenzen in einem Mehrphasensystem ermöglicht das *volume of fluid*-Modell (VOF). Das Modell basiert auf einer zusätzlichen Erhaltungsgleichung für den Volumenanteil der dispersen Phase in Eulerscher Betrachtungsweise. Zur exakten Darstellung der Phasengrenze müssen die Volumenelemente sehr klein im Vergleich zur Struktur der Phasengrenze sein. Daher ist das VOF-Modell nicht zur Darstellung von Tropfensprays oder Nassdampfströmungen geeignet ist.

Euler-Euler Mehrphasenmodell

Das Euler Modell dient der Beschreibung disperser Mehrphasensystemen. Dabei werden für jede Phase nach der Eulerschen Strömungsbeschreibung die Navier-Stokes Gleichungen (3.33) und (3.34) berechnet. Das Euler-Euler-Modell basiert auf über der Zeit gemittelten Phasenanteilen α_i , die Phasengrenzschicht wird somit nicht aufgelöst. Die Phasenwechselwirkungen wie Auftriebskräfte, Widerstandskräfte und der Phasenübergang gehen als zusätzliche Quellterme S_j^k in die Navier-Stokes Gleichungen ein. Größe und Form der dispersen Partikel sind Eingangsparameter der Modellgleichungen und müssen über Annahmen, Messungen oder Berechnungen bestimmt werden.

Eine Vereinfachung des Euler Modells stellt das *mixture* Modell da, in welchem die Erhaltungsgleichungen nur einmal für das Gesamtgemisch berechnet werden. Die Bestimmung des Strömungsverhaltens der einzelnen Phasen erfolgt über die Einführung von Differenzgeschwindigkeiten. Das *mixture* Modell basiert auf der Annahme eines geringen Phasenanteils der dispersen Phase und auf einer geringen Trägheit der Partikel.

DPM Mehrphasenmodell

Das Euler-Lagrange Modell in einem Zweiphasensystem basiert auf der Nutzung von unterschiedlichen Berechnungsansätzen für das Strömungsverhalten der beiden Phasen. Dabei wird die kontinuierliche Phase mit der auf dem Feldkonzept beruhenden Eulerschen Strömungsbeschreibung bestimmt, die diskrete Phase hingegen gemäß der Lagrangschen Strömungsbeschreibung in einem mitbewegtem Koordinatensystem. Die Differentialgleichungen für Ort, Kraft und Impuls werden hierbei für repräsentative Partikel entlang ihrer Trajektorien (Flugbahnen) berechnet. Für jeden Zeitschritt Δt werden in den entsprechenden finiten Elementen die Wechselwirkungen und das Gleichgewicht zwischen der diskreten und der kontinuierlichen Phase, der Stoff- und Wärmeaustausch und die aus den Krafteinwirkungen resultierende Flugbahn der Partikel berechnet. Der Impulstransfer von der diskreten auf die kontinuierliche Phase berechnet sich nach:

$$F = \sum \left[\frac{18\eta C_D Re}{\rho_p d_p^2 24} (v_p - v) + g \frac{(\rho_p - \rho)}{\rho_p} + F_p \right] \cdot \dot{m}_p \Delta t. \quad (3.37)$$

Hierbei ist η die Viskosität der diskreten Phase, ρ_p die Dichte und d_p der Durchmesser des Partikels, Re die relative Reynoldszahl, v_p die Geschwindigkeit des Partikels, v die Geschwindigkeit der kontinuierlichen Phase, C_D der Widerstandskoeffizient, \dot{m}_p der Massenfluss der Partikel,

Δt der Zeitschritt und F_p beinhaltet weitere Beschleunigungen die auf das Partikel wirken. Der Wechselwirkungsterm des Impulses ist dabei als zusätzlicher Quellterm in der Impulsbilanz der kontinuierlichen Phase zu berücksichtigen.

Zur Bestimmung des Wärmeaustauschs zwischen der diskreten und der kontinuierlichen Phase wird die Änderung der thermischen Energie eines Partikels bei der Durchströmung der einzelnen finiten Elemente berechnet. Für den Wärmeaustausch zwischen kontinuierlicher und diskreter Phase in einer Partikelströmung ohne chemische Reaktionen gilt:

$$Q = (m_{p,in} - m_{p,out}) [-H_{lat,ref} + H_{pyrol}] - m_{p,out} \int_{T_{p,ref}}^{T_{p,out}} c_{p,p} dT + m_{p,in} \int_{T_{p,ref}}^{T_{p,in}} c_{p,p} dT. \quad (3.38)$$

Hierbei ist $m_{p,in}$ die Masse der Partikel beim Eintritt und $m_{p,out}$ die Masse der Partikel beim Austritt aus dem Kontrollvolumen, $c_{p,p}$ die Wärmekapazität des Partikels, H_{pyrol} die Pyrolysewärme entstehender flüchtiger Anteile, $T_{p,in}$ die Partikeltemperatur beim Eintritt und $T_{p,out}$ die Partikeltemperatur beim Austritt aus dem Kontrollvolumen, T_{ref} die Referenztemperatur zur Enthalpieberechnung und $H_{lat,ref}$ die latente Wärme im Referenzzustand. Der Wechselwirkungsterm des Wärmeaustausches ist als zusätzlicher Quellterm in der Energiebilanz der kontinuierlichen Phase zu berücksichtigen.

Zur Modellierung von Wassertropfen stellt das DPM-Modell den Partikeltyp *droplet* zur Verfügung. Ein *droplet* Partikel ist ein flüssiger Tropfen in einer gasförmigen kontinuierlichen Phase. Das Erwärmen und Verdampfen eines Wassertropfens in Abhängigkeit von der Tropfentemperatur wird durch drei verschiedene Gesetze beschrieben:

$$T_p < T_{vap} : \quad m_p c_p \frac{dT_p}{dt} = h A_p (T_\infty - T_p) + \frac{dm_p}{dt} h_{fg} + \varepsilon_p A_p \sigma (\Theta_R^4 - T_p^4) \quad (3.39)$$

$$T_{vap} < T_p < T_b : \quad m_p c_p \frac{dT_p}{dt} = h A_p (T_\infty - T_p) + \varepsilon_p A_p \sigma (\Theta_R^4 - T_p^4) \quad (3.40)$$

$$T_p > T_b : \quad \frac{d(d_p)}{dt} = \frac{4k_\infty}{\rho_p c_{p,\infty} d_p} \left(1 + 0.23 \sqrt{Re_d} \right) \ln \left[1 + \frac{c_{p,\infty} (T_\infty - T_p)}{h_{fg}} \right] \quad (3.41)$$

Das dpm Modell berücksichtigt aufgrund des großen durchschnittlichen Partikelabstands und der niedrigen Beladung keine Partikelwechselwirkungen. Da in den diskreten Mehrphasenströmungen lokal höhere Beladungen und niedrigere durchschnittliche Partikelabstände auftreten können, werden diese Phänomene durch zusätzliche Modelle (*collision/breakup* und *two way coupling*) berücksichtigt.

Zur Beschreibung der Tropfen-Wand Wechselwirkungen nach Abbildung 2.22 stehen in FLUENT 5 Modelle zur Verfügung:

1. Beim *escape* Modell werden die Tropfen ohne weitere Wechselwirkungen aus dem System entfernt.
2. Beim *trap* Modell, verdampfen die Tropfen schlagartig unabhängig von den thermodynamischen Rahmenbedingungen. Die gesamte Masse geht direkt in die angrenzende Zelle über, gleichzeitig wird die zum Verdampfen benötigte Energie entzogen.

3. Beim *reflect* Modell werden die Tropfen abhängig von dem Auftreffwinkel und den Wand-eigenschaften von der Oberfläche reflektiert.
4. Das *wall-jet* Modell entspricht einer tangentialen Reflektion der Tropfen und führt zu einer Tropfenströmung über die Oberfläche. Dabei besteht kein direkter Tropfen-Wand Kontakt. Die Tropfen-Wand Wechselwirkungen finden gemäß den Gleichungen (3.37) bis (3.41) in der wandnahen Gasphase statt. Damit entspricht das *wall-jet* Modell einer Tropfenströmung bei Filmsieden.
5. Beim *wall-film* Modell bildet sich ein Wasserfilm auf der Oberfläche aus. Gleichzeitig treten Verdampfung an der Oberfläche, Tropfen-Reflektion und der Auswurf von Sekundärtropfen auf. Hierbei kommt es zu einer direkten Wechselwirkung zwischen den Tropfen und der Wand. Das *wall-film* Modell entspricht somit einer Strömung bei konvektivem Sieden.

Der Vergleich der Tropfen-Wand Wechselwirkungsmodelle mit dem in Kapitel 2 diskutierten Siedeverhalten von Wassertropfen zeigt, dass der Bereich des konvektiven Siedens durch das *wall-film*-Modell und der Bereich des Filmsiedens für hohe und niedrige Weberzahlen durch das *reflect*-Modell und das *wall-jet*-Modell beschrieben werden kann. Der für die Wärmetauscher und Verdampfer interessante Bereich des Blasensiedens wird nicht abgedeckt. Ebenso werden kurzzeitige Wechselwirkungen beim Tropfenprall mit hohen Weberzahlen nicht berücksichtigt.

Düsenmodellierung

Zur Beschreibung des Tropfensprays der im Brenngaserzeugungssystem verwendeten Drall-druckdüsen, wird ein Düsenmodell auf Basis der Arbeit von Schmidt [78] verwendet. Dabei werden Tropfen an einem definierten Punkt in das System eingebracht. Die axiale Geschwindigkeit der Tropfen berechnet sich aus dem vorgegebenen Druckverlust in der Düse, der Flüssigkeitsdichte und einem Geschwindigkeitskoeffizienten k_v , welcher die Geometrie der Düse, den Öffnungsdurchmesser d_0 und den Hohlkegelwinkel Θ berücksichtigt:

$$U = k_v \sqrt{\frac{2\Delta p}{\rho_L}}. \quad (3.42)$$

Die Hohlkegelgeometrie des sich bildenden Sprühbilds ist frei einstellbar. Die Tropfengröße berechnet sich aus dem Durchmesser d_L der sich auflösenden Flüssigkeitslamelle:

$$d_L = \sqrt{\frac{8h}{K_s}}, \text{ bzw. für kurze Wellenlängen: } d_L = \sqrt{\frac{2\pi C_L}{K_s}}. \quad (3.43)$$

K_s ist hierbei die Wellenzahl bei maximaler Wachstumsrate. Die Lamellendicke h ist unter anderem Funktion der sogenannten *sheet-constant* $\ln(\eta_b/\eta_0)$, welche das Verhältnis einer Anfangsstörgröße η_0 zur Zerfallsstörgröße η_b beschreibt. Sind die sich in der Lamelle ausbildenden Wellen kurz im Verhältnis zur Lamellendicke, wird von einem proportionalen Zusammenhang von der Wellenzahl ausgegangen. C_L ist hierbei der Proportionalitätsfaktor, die sogenannte

ligament constant. Die aus d_L bestimmte Tropfengröße d_0 dient als wahrscheinlichster Durchmesser zur Berechnung einer Rosin-Rammler Verteilung mit einer Streubreite von 3,5. Über die beiden Faktoren *sheet constant* und *ligament constant* lässt sich die Größe der im Modell injizierten Tropfen anpassen.

3.4.5 Poröse Medien (*porous media*)

In den Reaktoren der Brenngaserzeugung sind Strukturen zur Maximierung der Kontaktflächen und zur Erhöhung der Strömungsturbulenz eingebaut. Die keramischen Monolithe weisen dabei eine geordnete Kanalstruktur auf. Im Gegensatz dazu zeigen die metallischen Drahtgestricke einen ungeordneten isotropen Aufbau. Eine vollständige Auflösung der kleinskaligen porösen Strukturen wäre extrem rechen- und zeitaufwändig, so dass diese Strukturen vereinfachend als poröse Körper modelliert werden. Eine poröse Struktur wird in Fluent nicht als ein von einem Fluid durchströmter fester Körper modelliert, sondern nur über seine Strömungswechselwirkungen, unter Berücksichtigung einer über das Kontrollvolumen gemittelten Wärmebilanz. In den Erhaltungsgleichungen wird die Porosität γ und, im Falle einer Mehrphasenströmung, zusätzlich der Volumenanteil α der Erhaltungsgröße berücksichtigt:

$$\psi \rightarrow \gamma \psi, \phi_\psi \rightarrow \gamma \phi_\psi \psi \rightarrow \gamma \alpha \psi, \phi_\psi \rightarrow \gamma \alpha \phi_\psi. \quad (3.44)$$

Daraus ergeben sich die Navier-Stokes Gleichungen zu:

$$\frac{\partial (\gamma \rho \vec{v})}{\partial t} + (\vec{\nabla} \cdot \gamma \rho \vec{v} \vec{v}) = -\gamma \vec{\nabla} p + \vec{\nabla} \cdot (\gamma \vec{\tau}) + \gamma \vec{B}_f + S_i. \quad (3.45)$$

In der Impulsbilanz beschreibt der zusätzliche vektorielle Term S_i den Einfluss des porösen Körpers auf die Strömung. Die Energiebilanz ergibt sich zu:

$$\begin{aligned} & \frac{\partial (\gamma \rho_f \mathbf{e}_f + (1 - \gamma) \rho_s \mathbf{e}_s)}{\partial t} + \nabla \cdot (\vec{v} (\rho_f \mathbf{e}_f + p)) \\ &= \vec{\nabla} \cdot \left(k_{eff} \nabla T - \sum_i \vec{j}_i h_i + (\vec{\tau} \cdot \vec{v}) \right) + S_f^h. \end{aligned} \quad (3.46)$$

Der Akkumulationsterm enthält, abweichend von Gleichung (3.9), zusätzlich zur Gesamtenergie der freien Strömung auch die Gesamtenergie der festen porösen Matrix. Der Leitungsterm k_{eff} setzt sich ebenfalls aus einem Term der freien Strömung und einem Term der porösen Matrix zusammen:

$$k_{eff} = \gamma k_f + (1 - \gamma) k_s. \quad (3.47)$$

Wie Gleichung (3.46) zeigt, wird im finiten Volumen nicht zwischen Strömung und festem Körper aufgelöst. Die Strömungs- und Leitungseffekte zwischen zwei benachbarten Kontrollvolumen werden auf der Basis der so ermittelten Werte berechnet, was zu einer Homogenisierung des modellierten Temperaturgradienten führt. Die Wärmeleitung durch die feste poröse Matrix wird abgeschwächt dargestellt.

Die Mehrphasenmodelle ermöglichen keine direkte Modellierung von Wechselwirkung zwischen einer diskreten Phase und dem porösen Körper. Solche Wechselwirkungen werden lediglich über die Erhaltungsgleichungen der kontinuierlichen Phase (3.45) und (3.46) berücksichtigt. Somit können Effekte wie das Abscheiden und Verdampfen von Wassertropfen an der Oberfläche des porösen Körpers nicht modelliert werden. Der Einfluss des porösen Körpers auf die kontinuierliche Strömung wird über den Strömungswiderstand berücksichtigt. Der Strömungswiderstand ist in die zwei Faktoren *viscous-resistance-coefficient* ($1/\alpha$) zur Beschreibung des viskosen Widerstands und *inertial-resistance-coefficient* (C_2) zur Beschreibung des Trägheitswiderstands aufgeteilt [65]. Die reale Strömungsgeschwindigkeit $\vec{v}_{physical}$ im porösen Körper ergibt sich aus der Geschwindigkeit im freien Querschnitt $\vec{v}_{superficial}$ zu:

$$\vec{v}_{superficial} = \gamma \vec{v}_{physical} \quad (3.48)$$

Das *porous media*-Modell in FLUENT ermöglicht eine vereinfachte Berechnung mit $\vec{v}_{superficial}$. In den diskutierten Fällen ist es jedoch erforderlich die reale physikalische Geschwindigkeit zu modellieren, da diese einen starken Einfluss auf die Wärmeübergangskoeffizienten und das Verweilzeitverhalten hat. Der Druckverlust im porösen Medium wird grundsätzlich auf der Basis von $\vec{v}_{superficial}$ berechnet, da experimentell bestimmte Druckverlustbeiwerte in der Regel auf die Strömung im freien Querschnitt bezogen sind.

Der Druckverlust im porösen Körper wird nach dem Gesetz von Darcy-Weisbach berechnet:

$$S_i = - \left(\frac{\eta}{\alpha} + \frac{C_2 \rho}{2} |\vec{v}| \right) \vec{v}_{superficial} \quad (3.49)$$

Der Quotient aus dynamischer Viskosität η und Permeabilität α beschreibt die Auswirkungen der Permeabilität und entspricht dem Darcy Ansatz. Dieser wird durch einen Term des Impulsverlustes C_2 erweitert. Das Darcy-Weisbach Gesetz dient zur Beschreibung von isotropen porösen Strukturen. Die Monolithe in den Kernkomponenten der Brenngaserzeugung weisen eine anisotrope Kanalstruktur auf. Durch den Impulsverlust kann es auch in einer laminaren Strömung zu einem quadratischen Anstieg des Druckverlusts mit der Strömungsgeschwindigkeit kommen. Bei der Modellierung von feinen Kanalstrukturen als poröses Medium ist zu beachten, dass hier in einer laminaren Strömung der entsprechende lineare Zusammenhang zwischen Druckverlust und Strömungsgeschwindigkeit auftritt. Der C_2 -Term des Impulsverlustes ist zu vernachlässigen.

4 Stand der Technik

Ziel dieser Arbeit ist die Modellbildung zur Weiterentwicklung der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung in CFD-Gesamtmodellen. Vor diesem Hintergrund wird im folgenden Kapitel der Stand der Technik am IEK-3 anhand der Entwicklungshistorie der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung vorgestellt. Darauf aufbauend wird die Entwicklungsstrategie für die nächste Generation der Reaktoren hergeleitet. Hieraus ergibt sich ein Forschungs- und Entwicklungsbedarf in den Bereichen CFD-Modellentwicklung und Reaktorentwicklung. Auf Basis einer thematisch entsprechenden umfassenden Literatur- und Patentrecherche werden die Schwerpunktthemen dieser Dissertation hergeleitet und formuliert.

4.1 Reaktorentwicklung am IEK-3

Die Kernkomponenten der Brenngaserzeugung bestehen aus den in den Abbildungen 1.2 und 2.12 gezeigten Zonen Eduktaufbereitung, Reaktionszone und integrierter Wärmetauscher. Anhand dieser charakteristischen Konstruktionsmerkmale sind in den Tabellen 4.1 bis 4.3 die Entwicklungshistorien der Kernkomponenten ATR, WGS und CAB dargestellt. Schematische Darstellungen des Reaktordesigns der autothermen Reformier finden sich in Anhang A.1. Als erste Reaktorgeneration wurde der ATR 5 mit einem integrierten Rohrwendel-Wärmetauscher ausgeführt [41]. Im Wärmetauscher verhindert Luft als Trägergas eine Druck-Oszillation der Strömung. Die Eduktzuleitung in der Mischkammer erfolgt, analog zum ATR 4 [79], über eine Zweistoffdüse und eine axial im Gegenstrom angeordnete Dampfzuleitung [16, 79]. Die Effektivität $\eta_{\text{Mischkammer}}$ des Mischkammerdesigns ergibt sich aus der zur Gemischhomogenisierung erforderlichen Energie:

$$\eta_{\text{Mischkammer}} = \frac{E_{\text{kin, Gemisch}}}{E_{\text{kin, Edukte}}} \cdot 100 \quad (4.1)$$

Die Effektivität beschreibt dabei nicht die Qualität des Gemischs, sondern die Energie die zur Homogenisierung aufgebracht werden muss. Der ermittelte Wert ist somit ein Maß für die Druckverluste und die Pumpen- und Verdichterleistungen im System. Im ATR 5 liegt die nach Gleichung (4.1) ermittelte Effektivität bei unter 1 %. Im Betrieb mit einem konventionellen Kraftstoff wurde ein Umsatz von 99 % erreicht. Kohlenstoffablagerungen in der Mischkammer und im Bereich der Zweistoffdüse führten im Betrieb des ATR 5 zu einer starken Abnahme der katalytischen Aktivität. Vor diesem Hintergrund wurden am IEK-3 CFD-Simulationen als Werkzeug der Entwicklung und der Konstruktion der autothermen Reformier eingeführt. Auf Basis von CFD-Simulationen und *post-mortem* Analysen wurde die optimierte Mischkammer der Reaktorgenerationen ATR 7 und ATR 8 entwickelt [16]. Die Mischkammergeometrie vereint zwei effektive Gemischbildungsprinzipien: die Vermischung von überhitztem Wasserdampf und Kraftstoff nach dem Wirkprinzip einer Zweistoffdüse äußerer Mischung, sowie die Ver-

Tabelle 4.1: Entwicklungshistorie und -strategie der autothermen Refomer für eine HT-PEFC APU [16, 41, 80, 81]

ATR	Leistung	Eindüsung	Mischkammer	Wärmetauscher
5 A 5 B	3 kW 5 kW	Zweistoffdüse mit Luft	Zylindergeometrie, Luft- und Dampfzufuhr über eine Injektionslanze im Gegenstrom zur Kraftstoffeinspritzung	eingeschobene Rohrwendel im äußeren Ringspalt, Gleich- und Gegenstrom
7	5 kW	Dralldruckdüse	Venturirohrgeometrie, Dampfzufuhr axial rotierend im Gleichstrom zur Kraftstoffeinspritzung, Luftzufuhr radial im engsten Querschnitt	modifiziertes Rohrwendelkonzept ATR 5
8 (V2)	5 kW	Dralldruckdüse (Kühlung)	Mischkammerkonzept ATR 7 mit Flüssigkeitsabtrennung nach dem Prinzip eines Zyklons	modifiziertes Rohrwendelkonzept ATR 5
9.1 9.2	7 kW 10 kW	Dralldruckdüse Kühlung	Venturirohrgeometrie, Dampfzufuhr axial rotierend im Gleichstrom zur Kraftstoffeinspritzung, Luftzufuhr im 45° Winkel zur Achse, axial rotierend im Gegenstrom zur Kraftstoffeinspritzung	modifiziertes Rohrwendelkonzept ATR 5
10	50 kW	Dralldruckdüse Kühlung	Mischkammerkonzept ATR 9 mit Strömungseinbauten und Gemischrückführung	durchgängige Rohrwendel
11	10 kW	modulierbar Kühlung	modifiziertes Mischkammerkonzept ATR 9.2	durchgängige Rohrwendel
12	10 kW	modulierbar Kühlung	modifiziertes Mischkammerkonzept ATR 9.2	durchgängiger Ringspalt

mischung aller Edukte nach dem Prinzip einer Venturidüse. Die Mischkammer des ATR 8 ermöglicht zusätzlich die Abtrennung nicht verdampfter Kraftstoffrückstände nach dem Prinzip eines Zyklons [80]. Die Gemischbildungseffektivität der Reaktoren ATR 7 und ATR 8 liegt in der Größenordnung von 7 %. Ab der Variante V2 des ATR 8 wird der Düsenstock der Refomer aktiv gekühlt, um somit eine Verkokung des Kraftstoffs in der aufgeheizten Düse zu verhindern. Die Ergebnisse der Simulationsrechnungen und die Funktionalität der Reaktoren ATR 7 und ATR 8 konnte im Rahmen von Visualisierungsexperimenten und Prototypentests nachgewiesen werden. In der Mischkammer des ATR 9 wird durch eine Modifikation der Luftzuleitung Sauerstoff in den vorderen Verdampfungsbereich der Mischkammer transportiert, um dort eine exotherme Vorreaktion zu ermöglichen. Das mittels CFD-Simulationen erarbeitete Konzept ist in Abbildung 2.12 dargestellt [81]. Die hohe Leistungsklasse des ATR 10 erfordert eine Anpassung der Mischkammergeometrie. Auf Basis eines *upscale* der Mischkammer des ATR 9 wird eine homogene Gemischbildung durch den zusätzlichen Einbau eines Strömungskörpers und einer Gemischrückführung in den Bereich der Kraftstoffeinspritzung sichergestellt [82]. Tabelle 4.2 zeigt die Entwicklungsstufen der Wassergas-Shiftreaktoren am IEK-3. Das vereinfachte 2-Reaktoren-Konzept des WGS 4 entspricht Abbildung 2.12. Der WGS 4 wurde im Rahmen dieser Arbeit modelliert und ausgelegt. Die durchgeführten CFD-Simulationen basieren

Tabelle 4.2: Entwicklungshistorie und -strategie der Wassergas-Shiftreaktoren ab 2005

WGS	Leistung	Eindüsung	Reaktorstufen
3	5 kW	Dralldruckdüse	Getrennte Reaktoren für HTS und NTS, Zylindergeometrie, Quenchstufe mit Gewinde-Drallerzeugung
4	10 kW	Dralldruckdüse	Konzept WGS 3, vereinfachtes Design der Quenchstufe
5	50 kW	modulierbar	Integrierter Reaktor für die HTS und NTS Stufen

Tabelle 4.3: Entwicklungshistorie und -strategie der katalytischen Brenner ab 2005 [83]

CAB	Leistung	Eindüsung	Reaktorgeometrie
2	5 kW	Dralldruckdüse	Wassereindüsung auf Wärmetauscherfläche, Klöpperboden (2.1) / Hemisphäre (2.2, 2.3), Ringspaltwärmetauscher, Außenhülle mit Klöpperboden (2.1, 2.2) oder Flaschenhals-Geometrie (2.3)
3	10 kW	Dralldruckdüse	modifiziertes Konzept CAB 2

dabei ausschließlich auf der FLUENT Modellbibliothek. Ein Überblick über die durchgeführten Simulationen wird im Anhang A.2 gegeben.

Der katalytische Brenner CAB 2 wurde in [83] ausgelegt und konstruiert. Auf Basis der FLUENT Modellbibliothek wurde in [84] der integrierte Wärmeübertrager und Verdampfer modelliert. Hierbei erlaubten die verwendeten Modelle lediglich *worst-case* Abschätzungen. Als Ergebnis der durchgeführten CFD-Modellierungen wurden die Reaktorvarianten 2.2 mit optimierter Außenwandgeometrie und 2.3 mit hemisphärischer Prallfläche und optimierter Außenwandgeometrie entwickelt. Die drei Reaktorvarianten sind schematisch in Abbildung 2.12 dargestellt.

Die Entwicklungsstrategie der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung basiert auf den zwei grundlegenden Systemanforderungen der weiten Modulierbarkeit und des kompakten Systemdesigns. Die Modulierbarkeit der Reaktoren muss einen Betrieb der APU entsprechend des weiten Teillastbereichs der Brennstoffzellen ermöglichen. Hierzu wird ein Betriebsbereich der Reaktoren zwischen den Grenzen 25 % Last und 120 % Last angestrebt. Dies erfordert den Einsatz von innovativen Einspritzsystemen. Im Rahmen dieser Arbeit werden zwei Fallbeispiele zur Auslegung von weit modulierbaren Reaktoren betrachtet:

- die Modellierung und Auslegung des Wassergas-Shiftreaktors WGS 5 als integrierter Reaktor mit modulierbarem Einspritzsystem in der Quenchstufe und
- die Modellierung und Auslegung der weit modulierbaren Einspritzsysteme in den autothermen Reformern ATR 11 und ATR 12.

Das kompakte Systemdesign erfordert eine genaue Auslegung der integrierten Wärmeübertrager, um so eine Überdimensionierung der Komponenten zu verhindern. Ein erstes Optimierungskonzept basiert auf der vollständigen Integration der Wärmeübertrager, ohne die in

Abbildung 2.12 gezeigten externen Dampfleitungen. Als zweites Optimierungskonzept wird die Konstruktion von leichten und kompakten Ringspalt-Wärmeübertragern angestrebt. Im Rahmen dieser Arbeit werden anhand der einzelnen Entwicklungsstufen vier Fallbeispiele zur Auslegung von Reaktoren mit integrierten Wärmeübertragern betrachtet:

- die Wärmeübertrager in den autothermen Reformern ATR 10 und ATR 11, mit vollständig integrierten Rohrwendeln als Gegenstromwärmeübertrager ohne externe Dampfleitung,
- der optimierte Wärmeübertrager im katalytischen Brenner CAB 3, auf Basis einer Konzeptvalidierung der Prallflächen- und Ringspaltwärmeübertrager in den Designvarianten des CAB 2 und
- der Wärmeübertrager im autothermen Reformer ATR 12, als Gegenstromwärmeübertrager mit vollständig integriertem Ringspalt auf Basis der Reaktoren ATR 11 und CAB 3.

Die Entwicklungsstrategie der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung ist in den Tabellen 4.1 - 4.3 zusammengefasst. Die grau hinterlegten Felder bilden somit den Stand der Reaktorentwicklung als Grundlage diese Arbeit. Die weiß hinterlegten Reaktoren werden in den folgenden Kapiteln modelliert und ausgelegt. Die Validierung des Reaktorkonzepts des ATR 12 bildet dabei den ersten Schritt in der Entwicklung der wiederum nächsten Reaktorgeneration. Die Modellbildung und Validierung basiert dabei auf Prototypentests und *post-mortem*-Analysen der vorangegangenen Reaktorgenerationen. In den CFD-Modellierungen werden dabei zusätzlich die Anpassung der Mischkammergeometrien an die Einspritzsysteme sowie eine Optimierung der Konstruktionen in Hinblick auf eine einfachere Fertigung als Tiefziehteil berücksichtigt. Generell wird eine Modifizierung und Optimierung der Reaktoren vor dem Hintergrund von geänderten Designparametern und in Hinblick auf eine vereinfachte Konstruktion angestrebt. Tabelle 4.4 zeigt die aus der Entwicklungsstrategie abgeleiteten Rahmenbedingungen der Reaktorentwicklung. Dargestellt ist der geforderte Betriebsbereich der einzelnen Komponenten. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten CFD-Simulationen beziehen sich dabei auf den in Tabelle 4.4 definierten Auslegungspunkt der Reaktoren im System.

4.2 Modulierbare Einspritzsysteme

Die Entwicklungsstrategie der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung sieht den Einsatz von weit modulierbaren Einspritzsystemen vor. Vor diesem Hintergrund wird im folgenden Abschnitt der Stand der Technik für Zerstäubungssysteme von Mitteldestillaten analysiert. Die charakteristischen Eigenschaften der untersuchten Düsen sind in Tabelle 4.5 zusammengefasst. Die Tabelle bildet somit einen Kriterienkatalog zur Bewertung und Auswahl von Einspritzsystemen.

4.2.1 Technische Zerstäuber für Mitteldestillate

Zur technischen Zerstäubung von Mitteldestillaten kommen vielfältige Standard-Düsen, aber auch Sonderformen zum Einsatz. Im Folgenden werden für diese Einspritzsysteme die grund-

Tabelle 4.4: Volumenströme der Einspritzsysteme in den Kernkomponenten der Brenngaserzeugung

Systemparameter		Auslegungspunkt	Betriebsbereich
Systemwirkungsgrad	[%]	32	32 bis 33
Modulation	[%]	100	25 bis 120
$\dot{m}_{Kerosin, ATR}$	$\left[\frac{kg}{kW \cdot s}\right]$	$7,5 \cdot 10^{-5}$	$1,875 \cdot 10^{-5}$ bis $9 \cdot 10^{-5}$
$n(H_2O)/n(C)$	[-]	1,9	1,7 - 1,9
$n(O_2)/n(C)$	[-]	0,47	0,43 - 0,47
$x_{Dampf, ATR}$	[-]	0,5	
$T_{Dampf, Ein, ATR}$	[°C]	480	400 bis 500
$T_{WGS, Ein, max}$	[°C]	410	
$\dot{m}_{Wasser, WGS}$	$\left[\frac{kg}{kW \cdot s}\right]$	$5,4 \cdot 10^{-5}$	
λ_{CAB}	[-]	1,3	1 - 1,6
$\dot{m}_{Wasser, CAB}$	$\left[\frac{kg}{s}\right]$	$0,7 \cdot \dot{m}_{Wasser, ATR}$	

legenden Eigenschaften, typischen Anwendungen und der Einsatz in Brenngaserzeugungssystemen diskutiert.

Turbulenzdüsen sind einfache Einstoff-Druckdüsen. Die Zerstäubung basiert auf dem turbulenten Zerfall des Kraftstoffstrahls am Düsenaustritt. Entscheidend hierfür sind eine Strömung mit hoher Reynoldszahl und hoher Weberzahl. Je nach Düsengeometrie lassen sich unterschiedliche Sprühbilder realisieren [43, 44]. Turbulenzdüsen erzeugen im Vergleich zu lamellenbildenden Düsen größere Tropfendurchmesser bei gleichem Düsendurchmesser. Einsatzbereiche sind daher vor allem Anwendung in denen die möglichst feine Zerstäubung des Mitteldestillates nicht grundlegend für die Funktion ist. Typische Anwendungsbeispiele sind der Heizungs- und Brennerbau [92]. Weitere Einsatzgebiete sind Anwendungen im Bereich der Verdampfung und Gemischbildung von Mitteldestillaten [93].

Die in Kapitel 2 erläuterten Dralldruckdüsen sind in Brennern unterschiedlichster Ausführung weit verbreitet. Die Dralldruckzerstäubung ist dabei der Stand der Technik für Systeme ab einer Leistung von 7 kW_{th} . Erprobte und bewährte Einsatzgebiete sind der Heizungs- und Brennerbau [43, 44, 92]. Aufgrund der guten Sprayeigenschaften und der geringen Systemanforderungen werden Dralldruckdüsen im Bereich der Reformierung in mobilen Brennstoffzellen APUs eingesetzt [16, 94]. In der technischen Dokumentation von Reformersystemen wird das Zerstäubungssystem häufig einfach als Düse oder Druckdüse bezeichnet, ohne die genaue Bauform zu spezifizieren [95–97]. Aufgrund der besseren Sprayeigenschaften ist davon auszugehen, dass in diesen Systemen Dralldruckdüsen eingesetzt werden.

Bei Zweistoffdüsen äußerer Mischung (ZSDaM) erfolgt die Zerstäubung der Mitteldestillate außerhalb der eigentlichen Düse. Als Zerstäubermedium wird je nach Anwendungsfall, Luft und/oder Wasserdampf verwendet [98, 99]. Luft bietet sich dabei für Brenner oder die partielle Oxidation als Zerstäubungsmedium an, Wasserdampf für die Dampfreformierung. Luft wird in

Tabelle 4.5: Kriterienkatalog zur Düsenwahl [43–45, 85–91]

	Turbulenzdüse	Dralldruckdüse	ZSDaM	ZSDiM	Venturidüse	Rotationszerstäuber
Düsentyp	Einstoffdruckdüse		Zweistoffdüse		Mechanischer Zerstäuber	
Energie	Druck im Flüssigkeitsstrom		Druck im Gasstrom	Impuls im Gasstrom	Mechanik	
Zerfallsmechanismus	turbulenter Zerfall	Lamellenzerfall	Zerstäubungsfluid		Lamellen-/ Strahlzerfall	
Systemanforderungen						
Lastbereich [l/min]	> 0,5	> 0,015	> 0,017	> 0,017		
Modulation bei minimaler Last bei maximaler Last	1 : 1,72 1 : 5,4	1 : 1,22 1 : 5,5	1 : 10	1 : 10		
Düsenkühlung	-	-	+/-	-	+	+
Startupverhalten	+	+	-	-	+/-	+
Verstopfung	+	+/-	+	+	+	+
Verfahrenstechnische Anforderungen						
Tropfengröße	+	+	+	+	+	+/-
Sprühbild	Vollkegel	Hohlkegel	Vollkegel	Vollkegel	Gemisch	Hohlkegel
Lageabhängig	+	+	+	+	+/-	+/-
Konstruktive Anforderungen						
Auslegungsaufwand	+	+	+	+	-	-
Legende	+ : geeignet		- : nicht geeignet			

einem Druckbereich von 0,5 bis 1 bar für Mitteldrucksysteme und 6 bis 8 bar für Hochdrucksysteme zugeführt. Bei Dampf als Zerstäubergas liegt das Druckniveau zwischen 2 und 8 bar. Die Austrittsgeschwindigkeit des Kraftstoffs liegt in der Größenordnung von 1 m/s [43,44]. ZSDaM zeichnen sich durch Düsenöffnungen mit weiten Querschnitten zwischen 1 mm bis 10 mm aus. Die Modulation des Einspritzsystems ist in einem Verhältnis von 1:10 ohne Einbußen und bei gleich bleibender Sprayqualität möglich [91, 100]. ZSDaM weisen aufgrund der Verdichtung des gasförmigen Zerstäubermediums einen höheren Energieaufwand als Dralldruckdüsen auf. Das Prinzip einer Zweistoffdüse äußerer Mischung wird in vielen Reformersystemen durch eine konstruktive Anpassung der Luft- bzw. Dampfzufuhr an die Einstoffdüse umgesetzt [101, 102]. Bei Zweistoffdüsen innerer Mischung (ZSDiM) wird der Kraftstoff im Inneren der Düse mit dem Zerstäubungsgas gemischt und tritt als Zweiphasenströmung aus der Düse aus. Die Vor- und Nachteile dieses Düsentyps entsprechen denen der ZSDaM. Der Kraftstoff muss im Gegensatz zu ZSDaM mit leichtem Überdruck zugeführt werden. Aufgrund der inneren Mischung steigt die Gefahr von unerwünschten Reaktionen und Ablagerungen in der Düse.

In einer Venturidüse wird der Kraftstoff im engsten Querschnitt eines Venturirohrs in den Zerstäubungsgasstrom eingeleitet. Die Zerstäubung erfolgt durch den Impuls der Gasströmung. Venturidüsen werden technisch vor allem zur Zerstäubung und Gemischbildung in Vergasern genutzt. Im Automobilbereich wird die Vergasertechnologie häufig durch eine Direkteinspritzung ersetzt. In der Brenntechnik sind Venturidüsen nicht erprobt und erfordern eine aufwändige Auslegung. Dennoch kommen Venturidüsen in Reformersystemen für Brennstoffzellen APUs zum Einsatz [103–105]. Als Zerstäubungsmedium dient hier ein Luft-Dampf Gemisch, welchem vor dem Eintritt in die Venturidüse eine zusätzliche Rotationsbewegung aufgeprägt wird. Generell zeichnet sich ein Venturirohr durch gute Mischungseigenschaften aus. Durch die hohe Geschwindigkeit und den engen Querschnitt in der Mitte kommt es zu einer starken Vermischung im Gasstrom. Durch die anschließende Entspannung wird das Gasgemisch weiter homogenisiert und verteilt sich gleichmäßig über den Umfang. Daher finden sich Kombinationen von Düsen und Venturirohren in vielfältigen Mischungsanwendungen.

Eine Sonderform der Düsen bilden mechanische Zerstäuber. Die Zerstäubung von Kraftstoffen in einem Rotationszerstäuber erfolgt durch die Fliehkräfte an einem rotierenden Körper (Becher oder Scheibe). Der Kraftstoff wird der Düse drucklos zugeführt und bildet einen dünnen Film auf dem Rotationskörper aus. Die Regelung der Rotationsgeschwindigkeit ermöglicht ebenso eine gute Modulation der Düse. Aufgrund der bewegten Teile ist eine Rotationsdüse wartungsintensiv. Dabei sind die Düsen deutlich teurer als Standard-Dralldruckzerstäuber oder Turbulenzdüsen. Bei der Reformierung von Kraftstoffen für mobile Brennstoffzellen APUs kommen auch Ultraschallzerstäuber zum Einsatz. Diese können als Einstoffdüse [106] oder Zweistoffdüse [107] ausgeführt sein. In einem Einstoff-Ultraschallzerstäuber wird der Kraftstoff über einen Resonator zum Tropfenzerfall angeregt. In [108] konnte die Effizienz der Reformierung durch den Einsatz einer Ultraschalldüse um 20 % gesteigert werden. In einer Ausführung als Zweistoffdüsenbauweise werden die Tropfen in einem Gasstrom zusätzlich durch Schallwellen angeregt, so dass es zur Zerstäubung durch Tropfenoszillation kommt.

4.2.2 Weit modulierbare Einspritzsysteme für Mitteldestillate

Tabelle 4.5 fasst die charakteristischen Eigenschaften der diskutierten Einspritzsysteme zusammen. Der geforderte Betriebsbereich der Einspritzung zwischen 25 % Last und 120 % Last entspricht einem Modulationsverhältnis von 1 : 4,8. Diese Anforderung werden von den Zweistoffdüsen und den Einstoffdruckdüsen im hohen Lastbereich erfüllt. Zweistoffdüsen sind jedoch aufgrund der Gefahr der Verkokung [16] und der hohen erforderlichen Verdichterleistung nicht für den Einsatz im Brenngaserzeugungssystem geeignet. In einer APU der Leistungsklassen 5 kW und 10 kW liegt der minimale Kerosindurchsatz unter 0,015 l/min. Demzufolge sind in diesen Leistungsklassen Dralldruckdüsen nicht als weit modulierbares Einspritzsystem geeignet. Der folgende Abschnitt befasst sich mit dem Stand der Technik zur Erweiterung der Modulierbarkeit von Einspritzsystemen.

Der Betriebsbereich einer Düse lässt sich durch einen diskontinuierlichen Betrieb in den Bereich niedrigerer Lasten erweitern. Ein Beispiel für die Modulation durch getaktetes Einspritzen liefert das Einspritzventil. Hauptanwendungsgebiet dieser Injektoren ist die Kraftstoffeinspritzung im Automobilbereich. Das Zerstäubungsprinzip basiert dabei auf dem turbulenten Zerfall des Flüssigkeitsstrahls, analog zur Turbulenzdüse. Die eigentliche Düse des Einspritzventils wird als einfache Lochdüse oder als Mehrlochdüse ausgeführt [109]. Hauptbestandteil von Einspritzventilen ist der Ventilmechanismus. Moderne Einspritzventile werden über eine Magnetspule oder ein Piezoelement geschlossen. Die Modulation erfolgt über die Öffnungsfrequenz und die Pulsweite der Einspritzung. In [109] werden als charakteristische Dimensionen der Dieseleinspritzung Düsenvordrücke bis zu 2050 bar, eine Öffnungsfläche kleiner $0,25 \text{ mm}^2$, eine Pulsweite zwischen 1 ms und 2 ms und ein pro Puls eingespritztes Volumen zwischen 1 mm^3 und 50 mm^3 angegeben. Hieraus ergibt sich ein Durchsatz zwischen 0,03 l/min und 3 l/min. In [110] wird ein Einspritzventil zur Kraftstoffeinspritzung in einem Dieselreformer der Leistungsklasse 3 kW bis 10 kW verwendet. In [111] dient ein kommerzielles Einspritzventil als Komponente einer Strahlpumpe zur Einspritzung von Propan in den Reformer eines SOFC-Systems.

In [112] wird das Potenzial variabler Einspritzsysteme für die Benzin-Direkteinspritzung untersucht. Variable Dralldruckdüsen ermöglichen dabei eine Variation des Sprühwinkels im Betrieb. Der untersuchte Prototyp einer variablen Dralldruckdüse verfügt dabei, analog zum Einspritzventil, über eine Düsennadel zur Regelung der Einspritzung.

Für Systeme hoher Leistung kann die Modulierbarkeit der Einspritzung durch ein Mehrdüsenkonzept erweitert werden. Der Lastbereich lässt sich somit durch das Ab- bzw. Zuschalten einzelner Düsen erweitern. In [106] werden die charakteristischen Sprayeigenschaften von Mehrdüsenystemen untersucht.

4.3 Integrierte Wärmeübertrager und Verdampfer in Brenngaserzeugungssystemen

Vor dem Hintergrund eines einfachen und effizienten Systemdesigns ist in Brenngaserzeugungssystemen für Brennstoffzellenanwendungen ein optimiertes Wärmemanagement notwendig. Eine typische Anordnung ist die thermische Kopplung eines Dampfreformers mit einem

Brenner zur thermischen Nutzung des Anodenrestgases. Weitere Möglichkeiten der Temperaturregulierung und der Wärmerückgewinnung bietet die Integration der Wärmeübertrager in die WGS-Reaktoren und die PROX-Reaktoren.

Am IMM werden Reaktoren zur Brenngaserzeugung mit integrierten Mikrostruktur-Wärmetauschern für Anwendungen als mobile, portable APUs entwickelt. Die integrierten Bauteile bestehen aus einzelnen strukturierten Platten die als *Stack* zusammengebaut sind. Am IMM wurden mikrostrukturierte Dampfreformer, WGS-Reaktoren und PROX-Reaktoren mit integrierten Wärmeübertragern entwickelt [113–116].

Das Wärmemanagement im Brenngaserzeugungssystem des IEK-3 basiert auf der Integration des Dampferzeugungssystems in die autothermen Reformer und die katalytischen Brenner. Im Vergleich zu Systemen mit reiner Dampfreformierung oder partieller Oxidation führt der Ansatz der autothermen Reformierung des Kraftstoffs zu stark abweichenden thermischen Randbedingungen. Der Fokus der folgenden Literatur- und Patentrecherche liegt demzufolge auf integrierten Wärmeübertragern und Verdampfern in Brenngaserzeugungssystemen mit autothermer Reformierung von Mitteldestillaten.

Am Argonne National Laboratory wurde ein integrierter *fuel-processor* für Otto-Kraftstoff in der Leistungsklasse 10 kW_{el} entwickelt [117]. Der konzentrisch in drei Bereiche gegliederte *fuel-processor* enthält einen zentral angeordneten autothermen Reformer, vier WGS-Stufen und drei PROX-Stufen. Zwischen den einzelnen Reaktorstufen sind sechs Wärmeübertrager in den Reaktor integriert. Als zentraler Wärmeübertrager hinter dem autothermen Reformer wird ein *microchannel*-Wärmeübertrager der *Pacific Northwest National Laboratory* verwendet. Die weiteren Wärmeübertrager bestehen aus Kohlenstoffschaum *carbo foam* und wurden am *Oak Ridge National Laboratory* gefertigt. Im Betrieb durchströmt das Wasser die Wärmeübertrager 2 bis 6 in entgegengesetzter Reihenfolge der Reformatströmung. Vor Eintritt in den zentralen *microchannel*-Wärmeübertrager wird das Wasser mit dem Luftstrom gemischt, so dass ein überhitztes Luft-Dampfgemisch in den autothermen Reformer eintritt.

Ein ähnliches Grundkonzept wird in [118] verfolgt. Der am *Royal Military College of Canada* und am *Dalian Institute of Chemical Physics* entwickelte *fuel processor* für Otto-Kraftstoff vereint einen zentralen autothermen Reformer und zwei konzentrisch angeordnete Shift-Stufen. In diesem Design wurden vier Rohrwendel-Wärmeübertrager in den Reaktor integriert. Der erste Wärmeübertrager befindet sich dabei im Reaktorbett des autothermen Reformers. Der zweite und der dritte Wärmeübertrager liegen in der Gasumlenkungen vor der HTS-Stufe und der NTS-Stufe. Eine vierte Wärmeübertragerstufe befindet sich am Reaktorboden hinter dem Austritt des NTS. Im vorgestellten Konzept wird das Wasser in drei Ströme aufgeteilt, welche jeweils in einem der Wärmeübertrager 1 bis 3 überhitzt und verdampft werden. Die Luft wird im Reaktor in der äußeren Ummantelung aufgeheizt und vor dem Eintritt in den autothermen Reformer mit den drei Dampfströmen vermischt.

Ein teilweise konzentrisches Reaktorkonzept wird in [119] gewählt. Der *fuel processor* von Ballard Power Systems, in Zusammenarbeit mit VSI und der *University of Maryland*, vereint einen autothermen Reformer, einen Dampferzeuger sowie eine Entschwefelungsstufe und einen WGS-Reaktor. Das vorgestellte Reaktorsystem wurde für flüssige Kohlenwasserstoffe und LPG ausgelegt. In der ersten Entwicklungsstufe des Systems wurden der Reformer, die Entschwefelungsstufe und der WGS-Reaktor in Reihe geschaltet. Das Dampferzeugungssystem wurde

dabei in die Stufe des autothermen Reformers integriert. In der dritten Reaktorgeneration zeigt das Design eine konzentrische Anordnung um eine zentrale Reaktorstufe. Das Design basiert dabei auf einem Konzept von Tokyo Gas für einen *fuel processor* mit PROX.

Ein weiteres teilweise konzentrisches Reaktorkonzept wird von POWERCELL verfolgt [120]. Im vorgestellten Brenngaserzeugungssystem sind ein autothermer Reformer, eine Entschwefelungsstufe, zwei WGS-Stufen und zwei PROX-Stufen in Reihe geschaltet. Das Reaktorsystem wird von einem konzentrischen Mantel umgeben in welchem die Edukte Wasser und Luft strömen. Vor der Entschwefelung sowie den beiden PROX-Stufen wurden Wärmeübertrager in den Reaktor integriert. In diesen Stufen findet ein direkter Wärmeübertrag zwischen der inneren Strömung und der Strömung im Reaktormantel statt. Die Wärmeübertragung zwischen den beiden Strömungen wird dabei vorzugsweise über Gegenstrom- oder Kreuzstrom-Wärmeübertrager realisiert. In der konzentrischen Ummantelung sind zusätzliche Wärmeübertrager integriert. In diesen Stufen findet die Wärmeübertragung zwischen den Fluiden im Reaktormantel und den einzelnen Reaktionszonen des Reaktors statt. Als mögliche Gestaltung dieser Wärmeübertrager werden gefaltete Metallbleche zur Steigerung der Wärmeübertragung an der inneren und der äußeren Wand des Mantelraums diskutiert. Im Betrieb tritt die Luft am Austritt des Reaktors in den Mantelraum ein und strömt im Gegenstrom durch den Reaktor. Zwischen den einzelnen Wärmeübertragerstufen wird an bis zu drei Stellen Wasser in die Luft eingebracht. Das überhitzte Luft-Dampf Gemisch tritt vor dem autothermen Reformer in die Mischkammer des Reaktors ein.

Bei PCI wurde ein *fuel processor* für Diesel in der Leistungsklasse 2 kW_{el} bis 5 kW_{el} entwickelt [121, 122]. Im vorgestellten Reaktor sind der autotherme Reformer, die Dampferzeugung und die Entschwefelung integriert. Die Dampferzeugung ist dabei konzentrisch um den autothermen Reformer positioniert. Im Betrieb strömt das heiße Reformat durch den Wärmeübertrager in die linear angeordnete Entschwefelungsstufe.

Die vorgestellten Brenngaserzeugungssysteme basieren auf der Integration mehrerer Kernkomponenten inklusive der Wärmeübertrager und Verdampfer in einen Reaktor. Im Gegensatz dazu werden die Kernkomponenten der Brenngaserzeugung am IEK-3 einzeln entwickelt und anschließend in einem *Package* verschaltet. Die Wärmeübertrager zur Verdampfung und Überhitzung des Wassers sind dabei in den autothermen Reformer und den katalytischen Brenner integriert.

Am KAIST wurde ein *kerosene-reforming processor* für ein SOFC System in kW_{el} Maßstab entwickelt [108, 123]. Im dargestellten System wurde ein Wasserverdampfer und Überhitzer in den autothermen Reformer integriert. Die konzentrische Rohrwendel befindet sich dabei zwischen der Reaktionszone und der Reaktorisolierung. Die Wärmeübertragung findet somit ausschließlich durch die Wand zur Reaktionszone statt. In der Rohrwendel strömt das Wasser im Gegenstrom zur Hauptströmungsrichtung des Reformers. Das Wasser wird dabei verdampft und tritt als überhitzter Dampf in die Mischkammer des Reformers ein. Das vom KAIST vorgestellte Reaktorkonzept ähnelt somit dem Ansatz am IEK-3, Im Gegensatz zu den autothermen Reformern am IEK-3 wird die Rohrwendel jedoch nicht vom heißen Reformat umströmt. Weitere Beispiele für integrierte Wärmeübertrager finden sich in [124].

4.4 CFD-Reaktormodellierung

Die Grundlagen der CFD-Modellierung wurde in Kapitel 3 vorgestellt. Auf Basis der diskutierten FLUENT-Modelle wurden in [16, 81, 82] die Mischkammern der autothermen Reformergenerationen ATR 7, ATR 8 und ATR 9 modelliert und ausgelegt. Die durchgeführten Simulationen konnten dabei über Strömungsvisualisierungsexperimente und Prototypentests der entsprechenden Reaktoren validiert werden. Die verwendeten Modelle bilden somit die validierte Modellbasis dieser Arbeit. Der im Rahmen dieser Arbeit simulierte Wassergas-Shiftreaktor WGS 4 basiert dabei vollständig auf diesen Modellen und wird daher nur in Anhang A.2 vorgestellt. Im Gegensatz zu den Arbeiten von Porš werden in dieser Arbeit die Kernkomponenten der Brenngaserzeugung als vollständige Reaktoren modelliert. Hierzu muss die CFD-Modellbibliothek zur Darstellung der Reaktionszonen und der integrierten Verdampfer erweitert werden. Ein Vergleich der in Kapitel 3 diskutierten CFD-Modellbibliothek mit den grundlegenden physikalischen Phänomenen nach Kapitel 2 zeigt einen Bedarf an weiterführenden Methoden und Modellen zur Beschreibung von chemischen Reaktionen und Nassdampfströmungen. Hieraus ergeben sich die im folgenden Abschnitt hergeleiteten Arbeitsschwerpunkte. Der Stand der Technik für die entsprechenden Modelle wird dabei in den jeweiligen Kapiteln vorgestellt und analysiert.

Tabelle 4.6: Standardmodelle der CFD-Simulationen

	Modell	Spezifikation
Diskretisierung		Second Order Upwind
Turbulenz	$k - \epsilon$ -Modell	<i>Enhanced Wall-Treatment</i>
Stoffgemische	<i>Species</i> -Modell	<i>Volumetric, Wall-Surface, Laminar-Finite-Rate</i>
Strahlung	DO-Modell	
Tropfen	DPM-Modell	<i>Unsteady Particle Tracking, Two-Way Turbulence Coupling</i>
Stoffwerte		wenn möglich temperaturabhängig nach [50, 125, 126]

Tabelle 4.6 gibt einen Überblick über die in dieser Arbeit verwendeten Standard-Modelle. Die in den folgenden Kapiteln diskutierten CFD-Simulation basieren, wenn nicht anders gekennzeichnet, auf diesen Grundeinstellungen. Die Feinheit der verwendeten Netze orientiert sich an den *best-practices* von FLUENT, den experimentell validierten Simulationen von Porš und exemplarischen Netzsensitivitätsanalysen. In den Wänden der Reaktoren wird eine Schichtdicke von mindestens drei Zellen vorgegeben. Wandnahe Grenzschichten werden an den für die Wärmeübertragung relevanten Stellen gemäß Kapitel 3 aufgelöst. Dies führt gerade in den integrierten Wärmeübertragern zu sehr feinen Netzen. Im Anhang A.3 findet sich, stellvertretend für die im folgenden diskutierten Simulationen, eine Netzsensitivitätsanalyse am Fallbeispiel der Mischkammer des ATR 9.2.

4.5 Ableitung der Arbeitsschwerpunkte

In Kapitel 1 wurden als übergeordnete Ziele dieser Arbeit die Herleitung einer vollständigen CFD-Modellbibliothek zur Simulation der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung sowie, darauf aufbauend, die Entwicklung der nächsten Reaktorgeneration definiert. Die vorgestellte iterative Methodik zur Weiterentwicklung der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung basiert dabei auf der engen Verknüpfung zwischen der CFD-Modellierung und der experimentellen Modellbildung und Validierung. In diesem Kapitel wurde die Entwicklungsstrategie für die einzelnen Reaktoren vorgestellt. Auf Basis dieser Rahmenbedingungen wurde die Vollständigkeit der CFD-Modellbibliothek in Bezug auf die in Kapitel 2 diskutierten physikalischen Grundlagen der Brenngaserzeugung analysiert. Aus diesen Analysen ergeben sich drei Arbeitsschwerpunkte der numerischen strömungsmechanischen Modellierung eines Brenngaserzeugungssystems:

- die Entwicklung und Modifizierung von Einspritzmodellen zur Beschreibung des modulierbaren Einspritzsystems,
- die Entwicklung von Modellen und Methoden zur Einbindung der chemischen Reaktionen in die Modelle der Reaktoren der Brenngaserzeugung und
- die Entwicklung von Modellen und Methoden zur Beschreibung des Mehrphasensystems Nassdampf und der Tropfen-Wand Wechselwirkung.

Die hergeleiteten Arbeitsschwerpunkte bilden den Überbau der folgenden drei Hauptkapitel dieser Arbeit. Die Gliederung der Kapitel folgt hierbei dem charakteristischen Aufbau der Reaktoren: Einspritzsystem, chemische Reaktionszone, integrierte Wärmeübertrager. Die hergeleiteten und validierten Modelle werden zur Auslegung und Entwicklung der Reaktoren nach Tabelle 4.1 bis 4.3 angewandt. Als zusammenfassendes Hauptkapitel wird die vervollständigte CFD-Modellbibliothek in einem CFD-Gesamtmodell eines autothermen Reformers implementiert.

5 Modellierung und Auslegung weit modulierbarer Einspritzsysteme

Im Rahmen der Literatur- und Patentrecherche wurde der Stand der Technik von modulierbaren Einspritzsystemen diskutiert. In den Kernkomponenten der Brenngaserzeugung kommen, aufgrund der sehr guten Sprayeigenschaften, Dralldruckdüsen zum Einsatz. Das bisherige Reaktordesign basiert dabei, wie Tabelle 4.1 zeigt, auf dem kontinuierlichen Betrieb einer einzelnen in der Reaktorachse angeordneten Düse. Aus der diskutierten Entwicklungsstrategie der Kernkomponenten leitet sich für die Reaktoren eine geforderte Modulierbarkeit bis in den Teillastbereich von 25 % Last ab. Im folgenden Kapitel werden Modelle zur Beschreibung von modulierbaren Einspritzsystemen hergeleitet und validiert. Darauf aufbauend, werden an den Fallbeispielen eines Autothermen Reformers und eines Wassergas-Shiftreaktors, die Simulation und die Auslegung von weit modulierbaren Reaktoren diskutiert.

5.1 Modellierung einfacher Tropfensprays

In der Modellierung des Brenngaserzeugungssystems werden Einspritzsysteme für Kerosin und Wasser abgebildet. Hierbei werden die simulierten Fluide nicht in einer vollständig modellierten Düse zerstäubt, sondern punktuell am Ort der Injektion in den Rechenraum eingebracht. Die Starteigenschaften der einzelnen Tropfen und des Tropfensprays werden dabei über empirische Düsenmodelle vorgegeben. Die Grundlagen des in FLUENT implementierten Dralldruck-Düsenmodells wurden in Kapitel 3.4.4 erläutert. Die Genauigkeit der Spraymodellierung hängt im wesentlichen von den zugrundegelegten Düsenmodellen und Stoffeigenschaftsmodellen ab. Ebenso erfordert die Modellierung der Tropfenverdampfung eine genaue Abbildung der realen Stoffeigenschaften. Im Gegensatz zum Einkomponentensystem Wasser besteht Kerosin aus einem Stoffgemisch. Bei der Berechnung der Kerosineinspritzung und Verdampfung wird dieses Mehrkomponentensystem durch einen Modellkraftstoff modelliert.

5.1.1 Modellkraftstoffe für Kerosin

Die Simulation der Einspritzung, Verdampfung und Gemischbildung in den Reaktoren der Brenngaserzeugung basiert auf der Modellierung des Tropfensprays als diskrete Phase mit dem DPM-Mehrphasenmodell. Das DPM-Modell ermöglicht prinzipiell die Modellierung von *multicomponent*-Tropfen. Das Stoffgemisch Kerosin besteht aus bis über 100 verschiedenen Einzelstoffen. Die genauen Gemischeigenschaften sind in Tabelle 2.1 zusammengefasst. In der Literatur finden sich Modellgemische zur Beschreibung von Kerosin vor allem im Bereich der Modellierung von Verbrennungsreaktionen. Im Modell von Dagaut werden 209 *species* und 1673 reversible Reaktionen berücksichtigt [127], bei El-Bakali-Ristori 225 *species* [128] und

1800 reversible Reaktionen und bei Luche 91 *species* und 991 Reaktionen [127]. Eine Übertragung solcher Modelle in die CFD-Simulationen führt zu extrem komplexen und rechenintensiven Systemen. In der Auslegung der Kerosinverdampfung ist die Kenntnis der durchschnittlichen Stoffeigenschaften sowie der Extremwerte ausreichend. Die CFD-Simulationen des Kerosinsprays erfordern somit die Einführung eines vereinfachten Modellkraftstoffs. Für eine genauere Untersuchung des Einflusses der Kerosinzusammensetzung auf die Verdampfung und die Gemischbildung können charakteristische Stoffklassen zu jeweils einem Modellkraftstoff zusammengefasst werden. Vor dem Hintergrund der Gefahr von Verkokungsreaktionen und Kohlenstoffablagerungen in der Mischkammer ist besonders der Aromatengehalt im Kraftstoff von Interesse. Geeignete Komponentenklassen bietet demzufolge die Unterteilung in Aromaten und Aliphaten. Für eine feinere Unterteilung lassen sich die Stoffklassen anhand ihres Siedeverhaltens weiter unterteilen. In [129] wird der Modellkraftstoff „Kero“ definiert. Dieser besteht zu 0,767 Massenprozent aus linearen Kohlenwasserstoffen mit dem Modellkraftstoff $C_{10}H_{22}$, zu 0,132 Massenprozent aus Aromaten mit dem Modellkraftstoff C_9H_{12} und zu 0,101 Massenprozent aus Naphtalenen mit dem Modellkraftstoff C_9H_{18} . Die durchschnittliche Summenformel des Gesamtgemischs ergibt sich zu $C_{9,7396}H_{20,0542}$. In der Literatur finden sich unterschiedliche durchschnittliche Summenformeln des Stoffgemischs Kerosin. Umfassende Definitionen von Modellkraftstoffen für Kerosin bieten [126, 129–131].

Die im Rahmen dieser Arbeit modellierten autothermen Reformere basieren auf der Mischkammerkonstruktion von Porš [80]. Die Kraftstoffeinspritzung, Verdampfung und Gemischbildung in den Mischkammern wurde in [16] ausführlich modelliert. Das Mischkammerdesign konnte so optimiert und validiert werden. Im Rahmen dieser Arbeit wird daher auf eine vereinfachte Modellierung der Kerosineinspritzung und Verdampfung zurückgegriffen. Kerosin wird dabei durch einen einkomponentigen Modellkraftstoff mit über der Zusammensetzung gemittelten Stoffwerten beschrieben. Der implementierte Modellkraftstoff basiert auf der Zusammenfassung der Stoffeigenschaften von Jet A-1 in [126]. Die verwendete Modell Summenformel $C_{12}H_{23}$ entspricht hierbei keinem realen Stoff, bildet aber das durchschnittliche H/C -Verhältnis in Kerosin von 1,8 - 1,9. Da im weiteren Verlauf der Reaktormodellierung auch die chemischen Reaktionen der autothermen Reformierung eingebunden werden, ist die genaue Abbildung des H/C -Verhältnisses erforderlich.

Aufgrund der umfassenden Beschreibung der relevanten Stoffeigenschaften basiert der in dieser Arbeit verwendete Modellkraftstoff für Kerosin auf [126]. Die Gesetzmäßigkeiten der Stoffwerte wurden dabei über *user-defined-functions* in das CFD-Modell übertragen. Abbildungen 5.1 und 5.2 zeigen einen Vergleich von Stoffwerten des implementierten Modellkraftstoffs mit den entsprechenden Zusammenhängen aus der FLUENT Stoffdatenbank [125]. In den vorangegangenen Arbeiten von Z. Porš wurde die Siedetemperatur der Tropfen konstant als die maximale Siedetemperatur des Stoffgemischs angenommen [16]. Die Mischkammerauslegung basiert somit auf der *worst-case*-Annahme einer maximalen Siedetemperatur. Die FLUENT-Stoffdatenbank liefert einen konstanten gemittelten Wert der Siedetemperatur von Kerosin von $T_{S,m} = 204$ °C. Abbildung 5.2 zeigt den nach [126], in Abhängigkeit des verdampften Kraftstoffvolumen-Bruchteils x_{evap} , berechneten Verlauf der Siedetemperatur der Kerosintropfen. Die dargestellte Destillationskurve berücksichtigt hierbei die Abhängigkeit des Siedepunktes von der Stoffzusammensetzung. Der Kurvenverlauf resultiert aus der Zusammensetzung

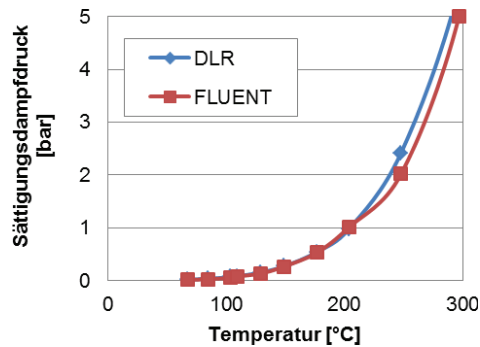


Abb. 5.1: Sättigungsdampfdruck von Kerosin in Abhängigkeit der Temperatur, nach [125, 126]

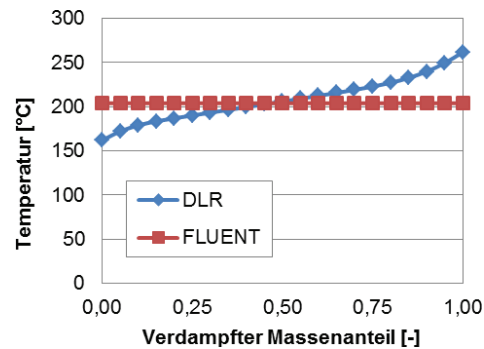


Abb. 5.2: Destillationskurve von Kerosin, nach [125, 126]

aus leicht siedenden Komponenten mit einer minimalen Siedetemperatur des Gemischs von $T_{S,min} = 162 \text{ °C}$ und schwer siedenden Komponenten mit einer maximalen Siedetemperatur von $T_{S,max} = 262 \text{ °C}$. In dieser Arbeit wird somit von der *worst-case*-Annahme der Siedetemperatur abgewichen. Abbildung 5.1 zeigt den temperaturabhängigen Verlauf des Sättigungsdampfdrucks. Die auf Basis der FLUENT-Stoffdatenbank und [126] berechneten Kurven zeigen dabei einen qualitativ ähnlichen Verlauf. In dem für das Sieden relevanten Temperaturbereich weichen die Kurvenverläufe zwischen 162 °C und 200 °C um weniger als 5 % voneinander ab. Oberhalb von 200 °C zeigen die Kurven einen stärker abweichenden Verlauf. Im Bereich der maximalen Siedetemperatur liegt der für den Modellkraftstoff berechnete Sättigungsdampfdruck um etwa 20 % über dem Wert des FLUENT-Modellkraftstoffs. Eine genaue Spezifikation des in dieser Arbeit verwendeten Modellkraftstoffs findet sich in [126] und im Anhang B.1.

5.1.2 Düsen- und Spraycharakterisierung

Die Verdampfungs- und Mischungszonen der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung werden mittels CFD-Simulationen ausgelegt und optimiert. Die Strömung in der Verdampfungszone und die Reaktorgeometrie werden dabei an das Strömungs- und Verdampfungsverhalten des Tropfensprays angepasst [81]. Demzufolge ist eine genaue Kenntnis der Düsencharakteristik grundlegend. Bestimmende Faktoren der Reaktorauslegung sind dabei:

- die Sprühbildgeometrie,
- die Tropfengröße und
- der druckabhängige Düsendurchsatz.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden die Sprühbildgeometrie und der druckabhängige Düsendurchsatz an einem eigens entwickelten Düsenteststand experimentell untersucht. Hierzu wurden,

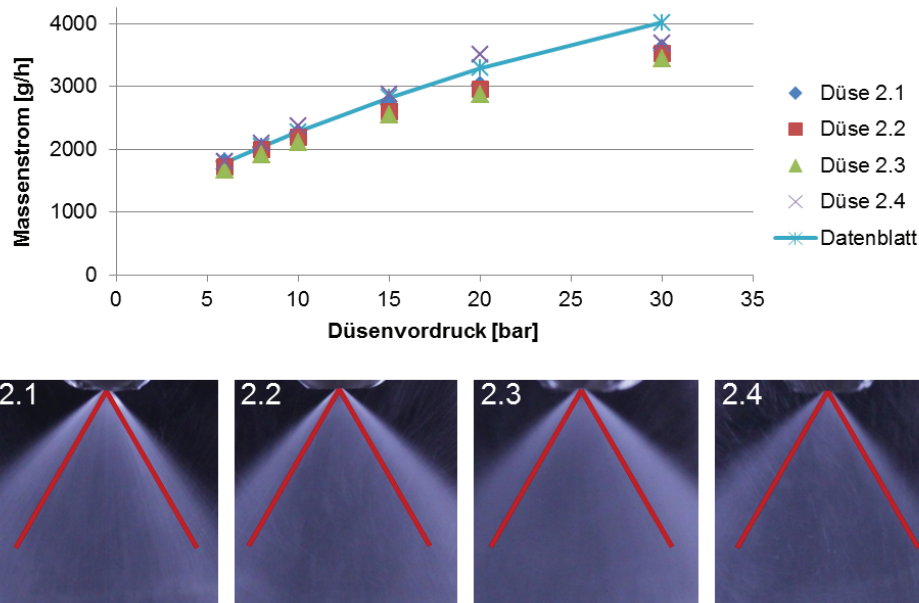


Abb. 5.3: Durchsatz und Sprühbild vierer baugleicher Dralldruckdüsen mit einem Öffnungsdurchmesser von 0,2 mm

im Düsenbetrieb mit Wasser, der Massenstrom und der Düsenvordruck gemessen. Aus sicherheitstechnischen Gründen erlaubt der Versuchsaufbau keine direkte Untersuchung eines Kerosinsprays. Im Betrieb wurde das Sprühbild mit einem Hochgeschwindigkeitsmikroskop aufgenommen. Als Lichtquelle der Aufnahme wurden ein Halogenstrahler mit einer Leistung von 1000 W sowie eine LED Durchlichtplatte verwendet. Eine genaue Beschreibung des experimentellen Aufbaus findet sich in Anhang B.2. Die Spezifikationen des Kamerasystems und des Versuchsaufbaus erlaubten dabei qualitativ ausreichende Aufnahmen mit bis zu 8000 Bildern pro Sekunde (*frames per second*, fps) mit einer Verschlusszeit (*shuttertime*) von maximal 1/10000 s. Der Bildausschnitt variierte dabei in Abhängigkeit der Bildrate in den Stufen von ≈ 8000 Pixel bei 200 fps, ≈ 16000 Pixel bei 4000 fps und ≈ 32000 Pixel bei 8000 fps. Diese Auflösung erlaubt die Analyse der instationären Effekte beim Aufbau und Zusammenbruch des Sprays. Im voll ausgebildeten Sprühbild liegen die Tropfengrößen in der Größenordnung von $30 \mu\text{m}$ und die Tropfengeschwindigkeiten über 30 m/s . Eine genaue Auflösung der einzelnen Tropfen im voll ausgebildeten Sprühbild ist kameratechnisch nicht möglich.

Abbildung 5.3 zeigt die experimentell ermittelten Wassermassenströme in Abhängigkeit des Düsenvordrucks am Fallbeispiel einer Düsencharge für den katalytischen Brenner CAB 2. Untersucht wurden vier baugleiche Düsen mit einem Bohrungsdurchmesser von 0,2 mm. Als Vergleich ist der Verlauf des Düsendurchsatzes aus den Herstellerangaben eingezeichnet [45]. Für Düsenvordrücke unter 10 bar stimmen die Durchsatzkurven der vier Düsen annähernd mit

den Herstellerangaben überein. Für höhere Vordrücke weichen die ermittelten Durchsätze der Düsen 2.1 bis 2.3 um unter 5 % voneinander ab. Hierbei wird ein geringerer Durchsatz als in den Herstellerangaben erzielt. Die maximale Abweichung des über die drei Düsen gemittelten Verlaufs liegt bei einem Düsenvordruck von 30 bar um 12 % unter den Sollwerten. Düse 2.4 zeigt einen stark abweichenden Verlauf des druckabhängigen Durchsatz. Die Kurve ist in den Bereich höherer Massenströme versetzt. Im Betriebsbereich eines Düsenvordrucks von 20 bar wird eine maximale Abweichung von 20 % in Bezug auf den gemittelten Verlauf der drei baugleichen Düsen gemessen. Abbildung 5.3 zeigt ebenfalls die Sprühbilder der vier untersuchten Düsen. Dargestellt ist das Sprühbild aus der Sicht, die eine maximale Abweichung der Düsengeometrie vom Soll-Wert zeigt. Die Düsen 2.1 und 2.4 zeigen eine Abweichung vom symmetrischen Sprühbild. Die ungleichmäßigen Sprühbilder weisen auf Verunreinigungen oder Geometrieabweichungen in der Düse hin. Diese Beobachtung deckt sich für die Düse 2.4 mit den Messungen der druckabhängigen Massenströmen. Die Düsen 2.2 und 2.3 zeigen ein symmetrisches Sprühbild. Der mittlere Sprühwinkel der Düsen lässt sich, aus der dargestellten Aufsicht nur ungenau optisch ermitteln. Die Düsen 2.2 und 2.3 weisen einen tendenziell zu großen Sprühwinkel auf. Nach Abbildung 5.3 sind die Düsen 2.1 und 2.4, aufgrund des asymmetrischen Sprühbilds, nicht zum Einsatz in den Reaktoren der Brenngaserzeugung geeignet. Durch eine sorgfältige Reinigung der Düse kann das Sprühbild jedoch gegebenenfalls verbessert werden. Mögliche Ursachen für die beobachteten Abweichungen werden im folgenden Abschnitt diskutiert. Ein zu großer Sprühwinkel der Düsen ist vor allem für den Einsatz im katalytischen Brenner problematisch. Die Position der Düse über der Aufsprühfläche wurde hier über den mittleren Sprühwinkel bestimmt. Ein zu großer Sprühwinkel verringert den Wassermassenstrom, welcher direkt auf die Verdampferfläche aufgesprüht wird. Aufgrund der gezeigten Abweichungen der Düsencharakteristik bei einzelnen Einspritzdüsen werden am IEK-3 geeignete Düsen im Rahmen einer Wareneingangskontrolle ausgewählt.

Die Tropfengrößen im Wasserspray konnten in diesem experimentellen Aufbau nicht bestimmt werden. Daher wird im Rahmen dieser Arbeit auf die Herstellerangaben in [45] und auf experimentelle Tropfengrößenbestimmungen in [132] zurückgegriffen. Die durchgeführten Untersuchungen basieren dabei auf Experimenten mit Wasser als zu zerstäubendes Fluid. Die Tropfengröße von anderen Fluiden, wie den Kraftstoffen der APU, werden über einen ähnlichkeitstheoretischen Ansatz ermittelt. Die wichtigsten Kennzahlen zur Beschreibung von Zerstäubungsphänomenen sind die Weberzahl We und die Ohnesorgezahl Oh :

$$We = \frac{\rho v^2 L}{\sigma} = \frac{\text{Trägheitskraft}}{\text{Oberflächenkraft}} \quad (5.1)$$

$$Oh = \frac{\eta}{\sqrt{L \cdot \rho \cdot \sigma}} = \frac{\text{Reibungskraft}}{\sqrt{\text{Oberflächenkraft} \cdot \text{Trägheitskraft}}} = \frac{\sqrt{We}}{Re} \quad (5.2)$$

über die Ohnesorgezahl werden die Zerfallmechanismen Zertropfen, Zerwellen und Zerstäuben nach Abbildung 2.14 unterschieden. Die über das Verhältnis der Trägheits- und Oberflächenkräften gebildete Weberzahl ist ein Maß für die Tropfenverformung in Bezug auf eine ideale Kugelform. Die Intensität der Tropfenverformung ist dabei bestimmend für die Feinheit von Zerstäubungsvorgängen. Aus der Weberzahl ergibt sich für ein Kerosinspray bei 60 °C ein

Durchmesser verhältnis von $d_{Kerosin,60^\circ C}/d_{Wasser} = 0,33$ in Bezug auf Wasser bei Raumtemperatur. Die Zerstäubungseinflüsse in Dralldruckdüsen werden mit diesen Kennzahlen jedoch nicht voll erfasst. Daher wird in dieser Arbeit auf einen experimentell angepassten Zusammenhang zur Bestimmung des Sauterdurchmessers d_{32} zurückgegriffen [133]:

$$d_{32} = 2,25 \cdot \sigma_B^{0,25} \cdot \mu_B^{0,25} \cdot \dot{M}_B^{0,25} \cdot \delta p_B^{-0,5} \cdot \rho_L^{-0,25} \quad (5.3)$$

Aus Gleichung (5.3) ergibt sich für die Einspritzung von Wasser, analog zum Auslegungspunkt des autothermen Reformers ATR 9.2 nach Tabelle 4.4, eine Sauterdurchmesser von $d_{32} \approx 25 \mu m$. Der ermittelte Sauterdurchmesser liegt damit in der Größenordnung des angegebenen volumetrisch mittleren Tropfendurchmessers von ebenfalls $MVD \approx 25 \mu m$. Aus Gleichung (5.3) ergibt sich für ein Kerosinspray bei $60^\circ C$ ein Durchmesser verhältnis von $d_{Kerosin,60^\circ C}/d_{Wasser} = 0,67$ in Bezug auf Wasser bei Raumtemperatur.

Durch die Eingangskontrolle der Düsen wird in den Kernkomponenten der Brenngaserzeugung der geforderte Düsenursatz und der Sprühwinkel der Einspritzung sichergestellt. Die in [45], in Abhängigkeit des Düsenöffnungsdurchmessers und des Düsen vordrucks, angegebenen volumetrisch mittleren Tropfendurchmesser konnten in ihrer Größenordnung über Gleichung (5.3) validiert werden. Die Herstellerangaben beziehen sich hierbei auf Wasser bei $16^\circ C$. Der Tropfendurchmesser der Kerosineinspritzung in den autothermen Reformern ergibt sich aus dem Ähnlichkeitstheoretischen Durchmesser verhältnis von $d_{Kerosin,60^\circ C}/d_{Wasser} = 0,67$.

5.1.3 Fehleranalyse der Dralldruckdüsen

In Abbildung 5.4 wurde für exemplarische Düsen eine Abweichungen des Düsendurchsatzes und des Sprühbildes von den Sollwerten aufgezeigt. Diese Fehler im Sprühbild können aus Verunreinigungen in der Düse und fertigungsbedingten Abweichungen der Düsengeometrie resultieren. Aufgrund der Kanalstrukturen innerhalb der Düse, in der Größenordnung der Düsenbohrung, sind die eingesetzten Dralldruckdüsen empfindlich gegen Verstopfungen. Abbildung 5.4 zeigt vier exemplarische Fehlerursachen in Bezug auf das Einspritzverhalten der Dralldruckdüsen. Dargestellt sind die Aufsichten auf die Düsenöffnung und auf den Düsenkörper in einer Rasterelektronenmikroskopaufnahme. Die Aufnahmen auf der linken Seite zeigen eine Düse mit einem Bohrungsdurchmesser von $0,1 \text{ mm}$. Der gemessene Öffnungsdurchmesser liegt in der Größenordnung von $d = 122 \mu m$ bei einem Nenndurchmesser von $d = 100 \mu m$. Die Öffnungsbohrung wurde von oben angesenkt, um eine saubere Austrittskante zu gewährleisten. Im oberen Bild sind Verunreinigungen im Bereich der Düsenöffnung zu erkennen. Die dunklen Ablagerungen bestehen aus organischen Materialien und sind mit hoher Wahrscheinlichkeit auf Schmier- und Kühlstoffe aus der Fertigung zurückzuführen. In der darunter liegenden Draufsicht des Drallkörpers sind metallische Späne in der Größenordnung der Kanalstrukturen zu erkennen. Lösen sich solche Späne im Betrieb der Düse können sie die feinen Bohrungen und Kanäle zusetzen. Dies kann zu einem vollständigen Verstopfen der Düse oder zu einer ungleichmäßig ausgebildeten Lamelle am Düsenaustritt führen. Die rechte Seite der Abbildung zeigt eine Düse mit einem Bohrungsdurchmesser von $0,15 \text{ mm}$. Der gemessene Öffnungsdurchmesser liegt in der Größenordnung von $d = 169 \mu m$ bei einem Nenndurchmesser von $d = 150 \mu m$. Im Gegensatz zur $0,1 \text{ mm}$ Düse wurde die Düsenbohrung nicht angesenkt.

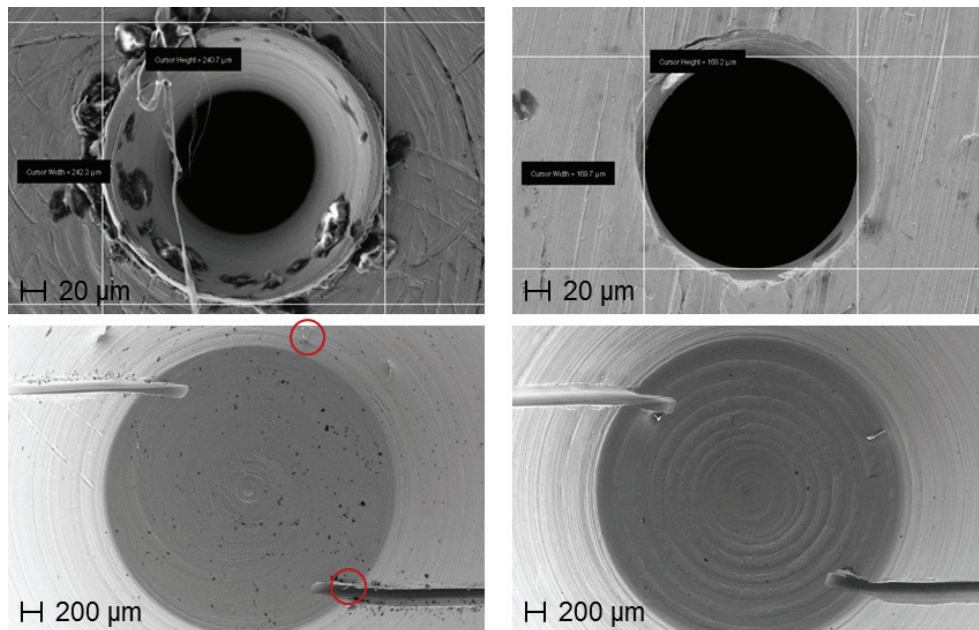


Abb. 5.4: REM-Aufnahmen zur Fehleranalyse in Dralldruckdüsen, Aufsicht der Düsenöffnung und des Düsenstocks bei Dralldruckdüsen mit einem Öffnungsdurchmesser von 0,1 mm (links) und 0,15 mm (rechts)

Durch einen abschließenden Bearbeitungsschritt der Düsenoberfläche ragt an der unteren linken Seite Material in die Düsenöffnung hinein. Diese unsaubere Kante beeinflusst die Bildung der Flüssigkeitslamelle. Dementsprechend weist die dargestellte Düse ein asymmetrisches Sprühbild auf. Die untere rechte Abbildung zeigt fertigungsbedingte Verengungen der Drallschlitze. Durch solche Geometrieabweichungen besteht die Gefahr, dass die Drallkammer ungleichmäßig angeströmt wird. Ungenauigkeiten in der Oberflächenbearbeitung des Drallkörpers können schlimmstenfalls zu einer ungenügenden Passung zwischen Drallkörper und Düsenkörper führen. Die in Abbildung 5.4 gezeigten Verunreinigungen der Düse lassen sich im Rahmen der Eingangskontrolle durch eine sorgfältige Reinigung der Düse beheben. Wirken sich die auf der rechten Seite dargestellten fertigungsbedingten Fehler negativ auf die Düsencharakteristiken aus, führt dies hingegen zu einem Ausschluss der entsprechenden Düse. Die Abweichungen des Düsendurchmessers von Nennwert beeinflussen den druckbedingten Massendurchsatz. Die Zerstäubungsfähigkeit des Düse ist hierdurch nicht beeinträchtigt. Gegebenenfalls kann jedoch der geforderte Betriebsbereich nicht mit der entsprechenden Düse realisiert werden.

Verunreinigungen in der Düse können auch im Betrieb entstehen. Um die Gefahr einer Verstopfung zu minimieren, werden im Brenngaserzeugungssystem Filter vor die Einspritzsysteme eingebaut. Dennoch konnte in Prototypentests eine Beeinflussung des Einspritzverhaltens nicht vollständig ausgeschlossen werden. Aufgrund der diskutierten Ausfallgefahren der Einspritzsys-

teme, ermöglicht die Konstruktion der Düsenstöcke grundsätzlich das Austauschen der Düsen in den Reaktoren.

5.1.4 Düsenmodellierung

In Kapitel 3 wurde das Modell des *pressure-swirl-atomizer* zur Beschreibung des Tropfensprays von Dralldruckdüsen vorgestellt. Dieses Modell wurde in den Arbeiten von Porš zur Modellierung der Mischkammern der Autothermen Reformer verwendet. Hierbei konnte die Eignung des Modells zur Beschreibung der Zerstäubung eines dieselähnlichen Kraftstoffs nachgewiesen werden [16]. Im *pressure-swirl-atomizer*-Modell müssen lediglich Geometriewerte, der Massenstrom und der Düsenvordruck als Modellparameter vorgegeben werden. Die Charakteristiken der Einspritzung werden im Modell auf Basis der Arbeiten von [78] berechnet. Eine Anpassung der modellierten Tropfendurchmesser erfolgte über die Stellgrößen *sheet-constant* und *ligament-constant*. Das Modell des *pressure-swirl-atomizers* ist für die Einspritzung von Kraftstoffen optimiert. Demzufolge ist das Modell zu Berechnung von Wassersprays, wie sie in den integrierten Verdampfern des Brenngaserzeugungssystems vorkommen, nur bedingt geeignet. In Abhängigkeit der Betriebsparameter sind die in den Datenblättern der Einspritzdüsen angegebenen Tropfendurchmesser nicht immer einstellbar.

Die Einspritzung der Wassertropfen wird in der CFD-Modellierung daher über das *cone*-Modell realisiert. Dieses einfache Modell basiert auf der geometrischen Grundform eines Hohlkegel. Sämtliche charakteristischen Parameter der Tropfeneinspritzung müssen dabei als Modellparameter vorgegeben werden. In der *cone*-Modellierung wird der Sprühwinkel der Einspritzung sowie der Tropfendurchmesser im Spray entsprechend [45] definiert. Der Aufweitungswinkel der Einspritzung ist hierbei gleich Null. Um eine Verteilung der Sprühwinkel zu berücksichtigen werden die Einspritzungen in mehrere *cone*-Modell mit unterschiedlichem Sprühwinkel aufgeteilt. Die Tropfengrößenverteilung wird, analog zum *pressure-swirl-atomizer*-Modell, über eine Rosin-Rammler Verteilung mit einer Streubreite von 3,5 berücksichtigt. Die Tropfengeschwindigkeiten wird über eine Modellierung des entsprechenden Betriebspunkts der Einspritzung mit dem *pressure-swirl-atomizer*-Modell ermittelt und in das *cone*-Modell übertragen. Somit können die charakteristischen Sprayparameter einer Wassereinspritzung über das *cone*-Modell simuliert werden. In einer zweidimensionalen Modellierung wurde analog zum *cone*-Modell eine *group-injection* verwendet. Dieses Modell erlaubt zusätzlich eine Variation des Einspritzwinkels. Modellbedingt werden hierbei die über das Rosin-Rammler Modell bestimmten Tropfengrößen der Größe nach über den Einspritzwinkel sortiert eingesprüht. Nach [132] ist die Verteilung so zu wählen, dass die Tropfengröße mit steigendem Sprühwinkel zunimmt.

5.2 Modellierung von Mehrdüsensystemen

Wie in Kapitel 4 gezeigt, sind Mehrdüsenkonzepte zur Realisierung einer weit modulierbaren Einspritzung mit einem minimalen Volumenstrom von $\dot{V} > 0,014 \text{ l/min}$ geeignet. Der Betriebsbereich einer einzelnen Düse lässt sich dabei durch das Hinzuschalten weiterer Düsen in den Bereich höherer Volumenströme erweitern. Für die Verdampfung und Gemischbildung ist

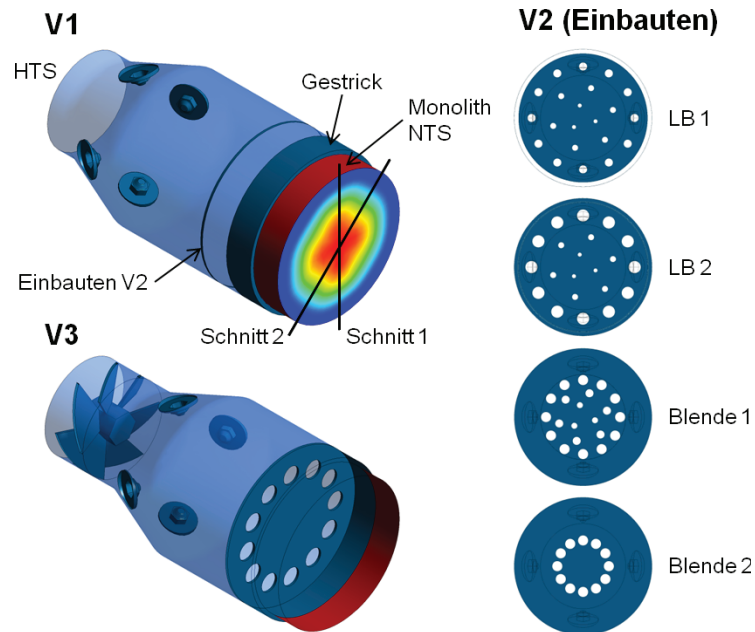


Abb. 5.5: Design der Quenchstufe des Wassergas-Shiftreaktors WGS 5 in den Varianten V1 bis V3

eine, von der Anzahl der Düsen unabhängige, gleichbleibende Gemischqualität sicherzustellen. In den Kernkomponenten der Brenngaserzeugung bieten sich Mehrdüsenkonzepte für die Reaktoren der Leistungsklasse größer als 10 kW an. Aufgrund der optimierten Mischkammerkonstruktionen analog zu den Reaktoren niedriger Leistungsklassen, wird in den autothermen Reformern das 1-Düsenkonzept nach Abbildung 2.12 beibehalten. Innerhalb der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung wurde im Wassergas-Shiftreaktor WGS-5 in der Leistungsklasse 50 kW erstmals ein Mehrdüsenkonzept realisiert.

5.2.1 Fallbeispiel Quenchstufe im Wassergas-Shiftreaktor WGS-5

Abbildung 2.12 zeigt den schematischen Aufbau der Wassergas-Shiftreaktoren WGS 3 und WGS 4. Diese Reaktoren basieren auf einer konstruktiven Trennung der Hochtemperatur und der Niedertemperaturstufe. Die Wassereinspritzung und Verdampfung ist dabei in den Niedertemperaturreaktor integriert. Die getrennte Konstruktion in zwei Reaktoren resultiert dabei aus den Anforderungen eines *Package* für APU-Anwendungen im mobilen Sektor. Die 50 kW Leistungsklasse wird für die Anwendung in einer Flugzeug APU konstruiert. In dieser Anwendung erlauben die Randbedingungen die Konstruktion von langen zylindrischen Reaktoren. Der WGS-5 vereint daher beide Shiftstufen in einem einzelnen Reaktor. Abbildung 5.5 zeigt als Version V1 das Grundkonzept der Reaktor-Quenchstufe. Hinter dem Austritt des HTS-

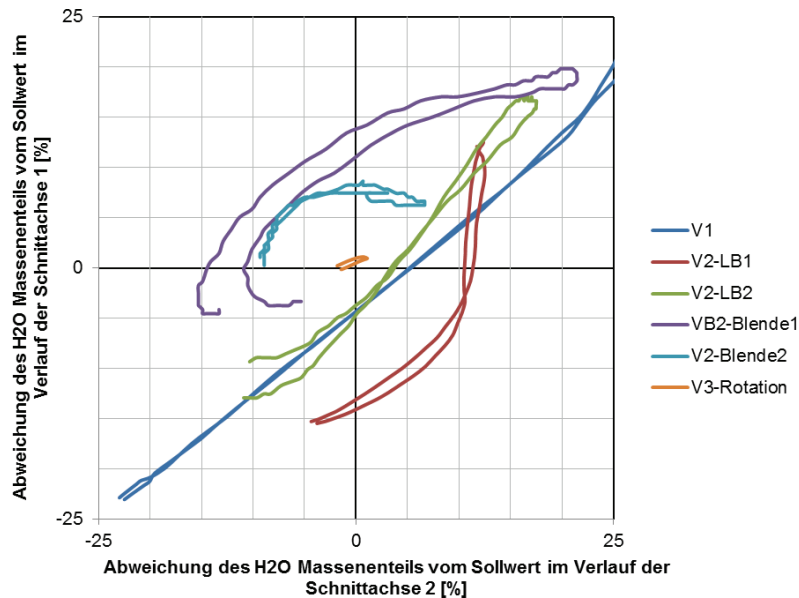


Abb. 5.6: Güte der Gemischbildung in der Quenchstufe des WGS 5 in den Varianten V1 bis V3

Monolithen weitet sich der Reaktor auf den größeren Durchmesser der NTS-Stufe. Im Bereich der Aufweitung sind über den Umfang gleichmäßig verteilt, vier Einspritzdüsen angeordnet. Vor dem Eintritt des NTS Monolithen befindet sich ein Drahtgestrick, um die Strömung zu homogenisieren und unvollständig verdampfte Wassertropfen aufzufangen.

In der Quenchstufe des WGS 5 wird ein Volumenstrom von $\dot{V} = 0,163 \text{ l/min}$ eingespritzt. Eine Einspritzung über eine einzelne Düse mit einem Öffnungsdurchmesser von 0,4 mm erlaubt dabei eine Modulierbarkeit zwischen 34 % und 120 %. Ein Betriebsbereich bis zu Teillasten von 25 % lässt sich in einer einzelnen Düse nur durch eine pulsierende Einspritzung realisieren. Im vorgestellten Reaktorkonzept ist hierbei, aus Gründen der Symmetrie, eine axiale Einspritzung notwendig. Aufgrund der diskutierten Gefahr einer fehlerhaften oder verstopften Düse, müssen die Einspritzdüsen in den Kernkomponenten der BGS dabei austauschbar sein. Dies erfordert bei einer axialen Einspritzung im Zentrum eines Reaktors einen erhöhten konstruktiven Aufwand. Um ein einfaches Systemdesign zu ermöglichen, wurde der WGS 5 somit auf Basis eines Mehrdüsenkonzepts entwickelt.

In der CFD-Simulation wurde der WGS 5 im Auslegungspunkt nach Tabelle 4.4 untersucht. Die Mehrphasenströmung wurde dabei als diskrete Phase modelliert. Die Spraymodellierung basiert auf dem beschriebenen *cone*-Modell. Um eine Variation des Sprühwinkels abzubilden wurde jede Düse über drei *cone*-Einspritzungen modelliert. Abbildung 5.5 zeigt qualitativ den Wasserkonzentrationsverlauf am Eintritt des NTS-Monolithen der Version V1. Dieser Verlauf resultiert aus der Lage der Verdampfungszone im Reaktor. Die freie Hauptströmung verläuft der

Reaktorachse folgend in Richtung des NTS-Monolithen. Das durch die vier Düsen eingespritzte Wasser verdampft in einer Nebelwolke im zentralen Bereich des Reaktors. Da die Hauptströmung im Reaktor annähernd parallel verläuft, erfolgt im hinteren Bereich der Quenchstufe nur eine geringe Homogenisierung des Gemischs. Das Konzentrationsprofil am Monolitheintritt wird somit durch die hohe Wasserkonzentration der zentralen Verdampfungszone dominiert. Der Verlauf des Konzentrationsprofils weicht dabei von einem rein konzentrischen Profil ab. Aufgrund der Wassereinpritzung über vier Düsen ist eine quadratische Grundstruktur des Konzentrationsprofils zu erkennen.

In Abbildung 5.6 wird graphisch die Güte der Homogenität des Gemischs am Eintritt des NTS Monolithen dargestellt. Hierbei ist der Verlauf des Wassermassenanteils über eine Schnittachse der Einspritzung gegenüber dem Verlauf des Wassermassenanteils über eine um 45° versetzten Achse aufgetragen. Die Verläufe der beiden Achsen sind in Abbildung 5.5 als Schnitt 1 und Schnitt 2 markiert. Die Wassermassenanteile werden über die prozentuale Abweichung zu einem homogenen Gemisch dargestellt. Durch den Versatz der beiden Achsen um 45° werden die Maxima und Minima der quadratischen Profile abgebildet. In dieser Darstellung wird ein homogenes Gasgemisch als einzelner Punkt im Nullpunkt abgebildet. Ein rein konzentrisches Profil führt zu einem diagonalen Verlauf. Ein Versatz der Kurven in den zweiten bzw. den vierten Quadranten weist auf eine Verschiebung des quadratischen Grundprofils hin. Verlaufen die Kurven tendenziell durch den zweiten Quadranten, so liegen die Ecken des quadratischen Grundprofils im Bereich der um 45° versetzten Achse. Bei einem Verlauf durch den vierten Quadranten liegen die Ecken im Bereich der Düsenchnittachsen. Abbildung 5.6 zeigt für die Variante V1 ein nahezu konzentrisches Konzentrationsprofil mit einer maximalen Abweichung des Wassermassenanteils zum homogenen Gemisch von über 25%.

Um die ungenügende Homogenisierung der Verdampfung und Gemischbildung auszugleichen, wurden in einer zweiten Reaktorvariante V2 unterschiedliche Lochbleche als Einbauten vor dem Eintritt in den NTS Monolithen eingefügt. Durch die Lochbleche wird die zentrale Hauptströmung in der Verdampferkammer aufgebrochen und umgelenkt. Abbildung 5.6 zeigt für die unterschiedlichen Lochblechvarianten ebenfalls annähernd konzentrische Konzentrationsprofile. Mit der Variante V2-Blende2 liegt die maximale Abweichung unter 10 %.

Als dritte Reaktorvariante V3 wurde direkt hinter dem HTS Monolithen ein Rotationskörper eingefügt. Durch die so erzwungene Rotation strömt das heiße Reformat hinter dem HTS der Außenwand folgend Richtung NTS. Wie Abbildung 5.7 zeigt, bildet sich im Bereich der Reaktorachse eine Rückströmung Richtung HTS aus. Die Verdampfung findet somit im Gegenstrom statt. Dies verhindert, dass unvollständig verdampfte Wassertropfen in den NTS Monolithen getragen werden. Das Wasser verdampft, wie Abbildung 5.8 zeigt, im Bereich der Rückströmung vollständig. Die zentrale Strömung mit hohem Wassermassenanteil gelangt im Bereich des Rotationskörpers in die rotierende Strömung an der Außenwand. Hier kommt es zu einer homogenisierenden Vermischung in der rotierenden Hauptströmung. Das Lochblech vor dem NTS Monolithen stellt sicher, dass nur das homogene Gemisch der rotierenden Hauptströmung in den NTS Monolithen gelangt. Die Strömung wird hinter dem Leitblech durch ein Drahtgestrick über den Monolithquerschnitt verteilt. Abbildung 5.6 zeigt für diese Mischkammervariante eine maximale Abweichung des Wassermassenanteils von unter 2 %, bezogen auf ein homogenes Gemisch.

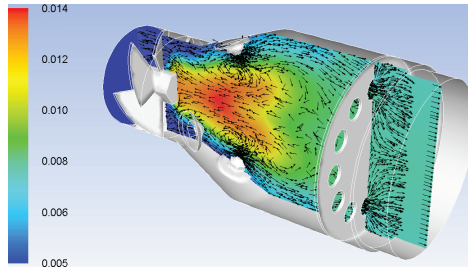


Abb. 5.7: Strömungsprofil und Konzentrationsverlauf in der Quenchstufe des WGS 5, Farbskala: molare H_2O -Konzentration in $[kmol/m^3]$

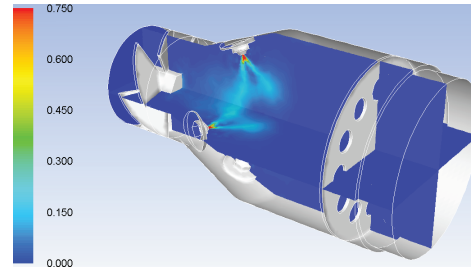


Abb. 5.8: Konzentrationsprofil der Wassertropfen in der Quenchstufe des WGS 5, Farbskala: DPM-Konzentration in $[kg/m^3]$

Durch die Reaktorvariante V3 wird somit ein homogenes Gasgemisch am Monolitheintritt des NTS sichergestellt. Durch die Rückströmung in der Verdampfungszone wird der Transport von unvollständig verdampften Tropfen in den NTS-Monolith verhindert. Abbildung 5.9 zeigt die Gemischqualität im Reaktor der Version V3 für die Lastpunkte 25 %, 100 % und 120 %. Im Lastpunkt 25 % werden nur noch zwei gegenüberliegende Einspritzdüsen betrieben. Somit wird eine weiterhin annähernd symmetrische Einspritzung gewährleistet. Die maximale Abweichung vom homogenen Gemisch liegt in diesem Lastpunkt bei 6 %. Gleichzeitig lässt sich eine stärkere Abweichung vom symmetrischen Verlauf erkennen. Für die Reaktorvariante V3 bilden die Graphen 5.6 und 5.9 nicht genau die Extremwerte des Konzentrationsverlaufs ab. Durch die rotierende Komponente der Strömung kommt es hier zu einer Verschiebung der Extremwerte. Die simulierten Konzentrationsprofile im WGS 5 zeigen, dass durch die Mehrdüsen einspritzung nach Variante V3 eine ausreichende Gemischqualität über den kompletten Lastbereich sichergestellt wird. Das Mehrdüsenkonzept erfüllt somit die Anforderungen an die Modulierbarkeit des Reaktors. Der Homogenisierungswirkungsgrad nach Gleichung (4.1) liegt mit 16 % etwa doppelt so hoch wie in den Reaktoren ATR 7 und ATR 8.

5.3 Modellierung von instationären Einspritzphänomenen

Einspritzsysteme mit einem Volumenstrom unter 0,014 l/min lassen sich nicht über ein Mehrdüsen system realisieren. Um eine Modulierbarkeit in Lastbereichen kleinerer Volumenströme zu gewährleisten, wird der Grundsatz der kontinuierlichen Einspritzung aufgegeben. Durch eine pulsierende Einspritzung lassen sich im Mittel kleinere Volumenströme als der minimale kontinuierliche Volumenstrom einer Düse realisieren. Das System muss dabei so ausgelegt werden, dass die Verdampfung und Gemischbildung trotz instationärer Einspritzvorgänge eine kontinuierliche homogene Gemischqualität liefert. Hierzu werden die Taktfrequenz und die Pulsweite der Einspritzung mittels CFD-Simulationen optimiert. Die Modellierung der instationären Ein-

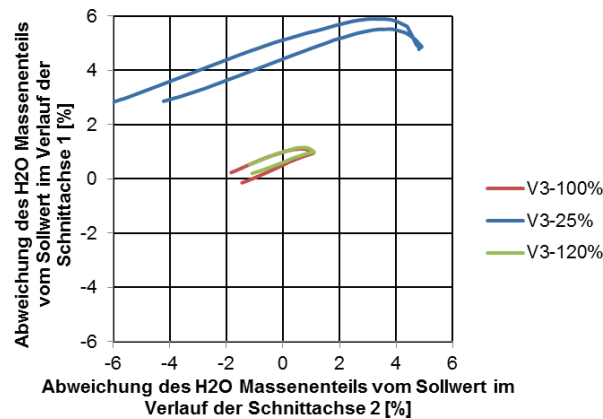


Abb. 5.9: Güte der Gemischbildung in der Quenschstufe des WGS 5 V3 bei 25 % Last, 100 % Last und 120 % Last

spritzung erfordert dazu genaue Modelle zur Abbildung der instationären Strömungsphänomene. Im folgenden werden die verwendeten Modelle der FLUENT-Modellbibliothek anhand von instationären Strömungsphänomenen in den Fallbeispielen ATR 8 und ATR 10 validiert.

5.3.1 Validierung der Verweilzeitanalyse am Fallbeispiel ATR 8

In [81] wurden Strömungsvisualisierungsexperimente zur Untersuchung des Strömungsverhaltens im autothermen Reformier ATR 8 durchgeführt. Hierbei wurde eine Glasvariante des Reaktors mit, über einen Ähnlichkeitstheoretischen Ansatz berechneten, Wassermassenströmen beaufschlagt. Durch die Vorgabe einer gleichen Reynoldszahl wurde dabei die Ähnlichkeit der Wasserströmung zur realen Gasströmung sichergestellt. Zur Visualisierung des Strömungsverhaltens wurde Methylenblau als farblicher *Tracer* in die Eduktströme eingebracht. Anhand der Farbintensität der Strömung im Reaktor lässt sich der Anteil an Methylenblau im Fluid bestimmen. Abbildung 5.10 zeigt das so bestimmte Verweilzeitverhalten der Eduktströme Luft und Dampf in der Mischkammer des ATR 8. Dargestellt sind die Verweilzeitsummenkurven. Das Verweilzeitverhalten im Reaktor wurde in einem über die Ähnlichkeitstheorie bestimmten analogen Betriebspunkt mittels CFD modelliert. Zur Bestimmung der Verweilzeitfunktionen wurden in der Modellierung die Komponenten Luft, Wasser und Kerosin sowie die entsprechenden Tracerkomponenten $\text{Luft}_{\text{Tracer}}$, $\text{Dampf}_{\text{Tracer}}$ und $\text{Kerosin}_{\text{Tracer}}$ berücksichtigt. Die Stoffeigenschaften der Tracersubstanzen entsprechen dabei den jeweiligen Edukten. Das Verweilzeitverhalten wurde in einer instationären Simulation mit einer Zeitschrittweite von 0,001 s simuliert. Als Turbulenzmodell wurde das $k - \epsilon$ -Modell verwendet. Grundlage der Modellierung bildete ein konvergiertes Simulationsergebnis mit den Komponenten Luft, Dampf und Kerosin. Zum Zeitpunkt $t=0$ wurden in der Simulation die Edukte am Reaktoreintritt durch die entsprechenden Tracer ersetzt. Dieses Verhalten entspricht einem Stufensignal am Edukteintritt. Während der transienten Simulation wurde der zeitliche Verlauf der Massenanteile der Edukte und der

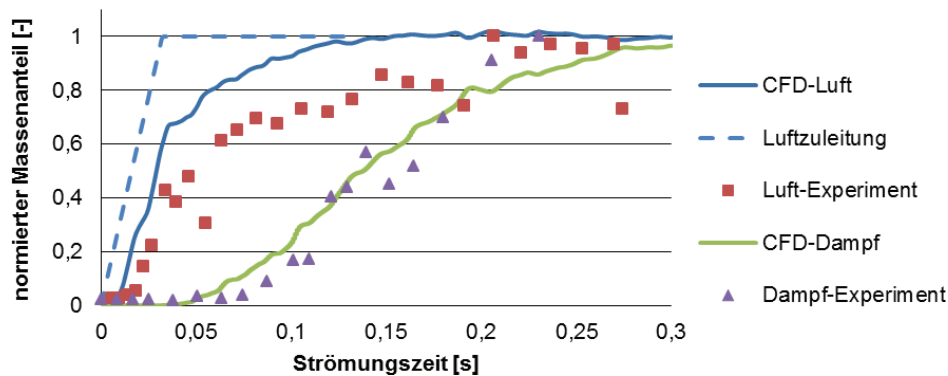


Abb. 5.10: Experimentell und simulativ ermittelte Verweilzeitsummenkurven von Wasser und Luft in der Mischkammer des ATR 8

Tracerkomponenten am Monolitteintritt aufgenommen. Die Antworten auf die Stufensignale am Reaktoreintritt sind dabei die, in Abbildung 5.10 gezeigten, Verweilzeitsummenkurven der einzelnen Komponenten. Der Kurvenverlauf für Luft deckt sich sehr gut mit dem experimentell bestimmten Verlauf. Der simulierte Verlauf für Dampf zeigt, im Vergleich zum Experiment, einen Versatz in den Bereich geringerer Strömungszeiten. Diese Verschiebung resultiert aus der Vernachlässigung der Luftverteilerkammer in der Simulation. Die hydrodynamische Verweilzeit in der Luftkammer liegt in der Größenordnung von 0,016 s. Unter der Annahme einer gleichmäßigen Verteilung der Luft über die Eintrittsbohrungen der Mischkammer ergibt sich die gestrichelt dargestellte vereinfachte Verweilzeitsummenkurve der Luftkammer. Unter der Berücksichtigung der Luftzuleitung zeigen auch die experimentell und simulativ ermittelten Verweilzeitsummenkurven der Luft den qualitativ gleichen Verlauf.

Nach Abbildung 5.10 konnte gezeigt werden, dass die CFD-Modelle der FLUENT Modellbibliothek, die instationären Strömungsphänomene in der Mischkammer der autothermen Reformer hinreichend genau abbilden. Die Validierung basiert dabei auf der Untersuchung des Verweilzeitverhaltens im Reaktor. Lokale instationäre Strömungsphänomene wurden nicht betrachtet.

5.3.2 Validierung der lokalen Modellgenauigkeit am Fallbeispiel ATR 10

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Strömungsvisualisierungsversuche an einer Glasvariante der Mischkammer des ATR 10 durchgeführt. Der Versuchsablauf wurde dazu analog zum diskutierten Fall des ATR 8 gewählt. Eine genaue Beschreibung des Versuchsaufbaus findet sich in Anhang B.3. In den Strömungsvisualisierungsexperimenten konnten zwei charakteristische lokale Abweichungen des transienten Strömungsverlaufs identifiziert werden. Abbildung 5.11 zeigt auf der linken Seite, durch die Verteilung der Luftblasen in der Mischkammer, eine Abweichung der zentralen Strömung von der Reaktorachse. Ein entsprechendes Strömungsverhalten lässt sich im ebenfalls dargestellten simulierten Strömungsbild erkennen. Die Richtung und die

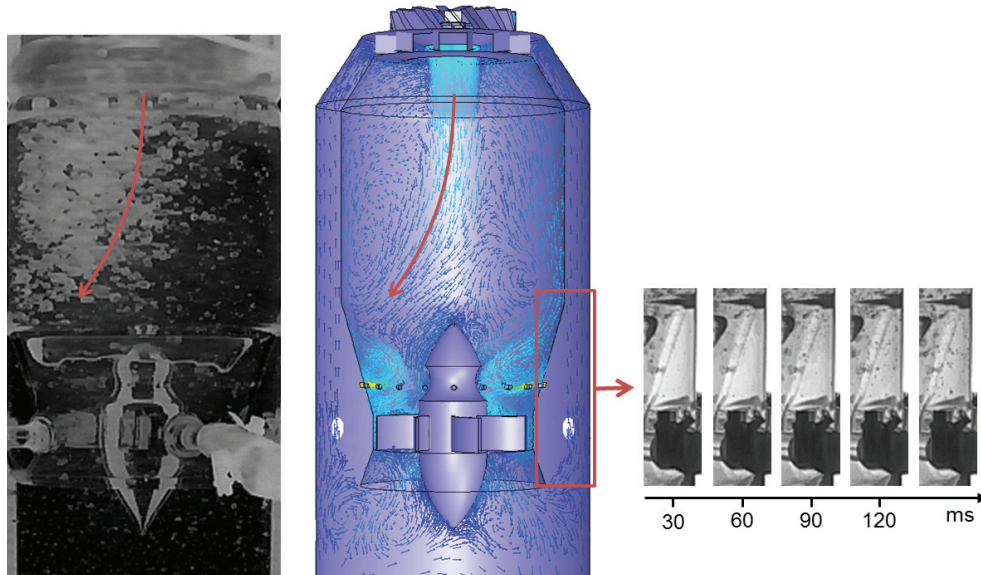


Abb. 5.11: Experimentell und simulativ ermitteltes instationäres Strömungsverhalten in der Mischkammer des ATR 10

Ausprägung der Abweichung ist zufällig. Haupteinflussfaktoren scheinen dabei unter anderem Ungleichmäßigkeiten im Sprühbild und der Tropfenverdampfung zu sein. Abbildung 5.11 zeigt auf der rechten Seite eine lokale Umkehrung der Strömungsrichtung in der Gemischrückführung [134]. In einem äußeren Ringspalt der Mischkammer strömt das Gemisch in den vorderen Bereich der Dampfzuführung, um so die Gemischbildung zu optimieren. In der dargestellten Bilderfolge ist die lokale Ausbreitung der Tracerfront in der Rückführung zu erkennen. Der Tracer strömt dabei von oben nach unten, also entgegengesetzt der eigentlichen Rückströmung. Das simulierte Strömungsbild zeigt, auf der Gegenseite der Auslenkung der inneren Hauptströmung, ebenfalls eine Umkehrung der Strömungsrichtung in der Gemischrückführung. Die beiden diskutierten instationären lokalen Strömungseffekte stehen dabei anscheinend in einem Zusammenhang.

Aufgrund des chaotischen Charakters der diskutierten lokalen instationären Strömungsphänomene lassen sich diese Effekte nur schwer über Strömungsvisualisierungsexperimente und CFD-Modellierungen abbilden. Somit bildet Abbildung nur eine qualitative Validierung der Modellgenauigkeit in Bezug auf das lokale instationäre Strömungsverhalten in der Mischkammer. Die diskutierten Strömungseffekte treten dabei sowohl bei der Modellierung mit dem $k - \epsilon$ -Modell, als auch mit dem LES Modell auf.

5.4 Herleitung eines pulsierenden Einspritzmodells

Die diskutierten FLUENT Düsenmodelle ermöglichen nur eine kontinuierliche Einspritzung der Fluide. Nach Tabelle 4.1 ist in den autothermen Reformern ATR 11 und ATR 12 eine pulsierende Einspritzung zur Erweiterung der Modulierbarkeit im Lastbereich bis zu 25 % vorgesehen. Zur Darstellung der Pulsation wurde im Rahmen dieser Arbeit die Zeitkomponente der Einspritzung über eine *user-defined-function* implementiert. Die UDF ermöglicht dabei die Realisierung von unterschiedlichen Taktfrequenzen und Pulsweiten. In der einfachsten Ausführung der UDF wird das verwendete Düsenmodell anhand der vorgegebenen Einspritzparameter an- bzw. ausgeschaltet. Hierbei werden die instationären Effekte des Sprühbildaufbaus und des Zusammenbruchs nicht berücksichtigt. Die so vereinfachte Modellierung erlaubt die Optimierung der Pulsparameter um eine über die Zeit konstante Gemischqualität sicherzustellen. Hierfür ist ein Zeitschritt von 0,001 ms ausreichend.

5.4.1 Hochgeschwindigkeitsanalyse der instationären Einspritzphänomene

Durch instationäre Effekte beim Aufbau und Zusammenbruch des Sprühbilds entstehen Tropfen die in ihrer Größe und ihrem Geschwindigkeitsvektor wesentlich vom voll ausgebildeten Spray abweichen. Um eine vollständige Verdampfung dieser Tropfen in der Reaktorauslegung sicherzustellen, werden die instationären Effekte in der Modellierung eingebunden. Als Basis der Modellierung dient die Hochgeschwindigkeitsanalyse eines pulsierenden Einspritzsystems. Hierzu stand ein Prototyp mit einem Schnellschlussventil (*rapid reaction valve*) der Firma GSR Ventiltechnik zur Verfügung. Die im Einspritzsystem verwendete Düse war dabei eine Sonderanfertigung mit minimiertem Volumen zwischen Ventil und Düsenaustritt. Die Minimierung dieses Volumens erhöht die Genauigkeit der Regelung und minimiert die instationären Effekte beim Sprühbildaufbau und Zusammenbruch. Analog zur vorgesehenen Einbausituation in den autothermen Reformern wurde die Düse im Experiment senkrecht stehend, nach oben spritzend ausgerichtet. Hierdurch wird ein Leerlaufen der Düse bei geschlossenem Ventil verhindert. Die experimentell ermittelten Werte werden mittels einer ähnlichkeitstheoretischen Betrachtung auf die Standard-Düsen im autothermen Reformer übertragen. Der im Folgenden diskutierte Betrieb der pulsierenden Einspritzung wurde mit einer Bildrate von 4000 fps und einer *shutter-time* von 1/10000 s aufgenommen.

Abbildung 5.12 zeigt als Bilderfolge den Aufbauvorgang des Tropfensprays nach Öffnung des Ventils zum Zeitpunkt $t = 0$. Nach 2 ms ist das Sprühbild vollständig aufgebaut. Wasser, welches sich zu Beginn der Einspritzung ruhend in der Drallkammer der Düse oder als Film auf der Düsenöffnung befindet, wird dabei mitgerissen und nur grob zerstäubt. Aus Abbildung 5.12 lässt sich für diese erste Einspritzphase ein durchschnittlicher Tropfendurchmesser in der Größenordnung der halben Düsenöffnung ablesen. Die axiale Geschwindigkeit dieser Tropfen liegt bei etwa 7 m/s. Die Tropfen der ersten Einspritzphase zerfallen nicht im in Abbildung 2.14 gezeigten Regime des Lamellenzerfalls. Der Zerfallmechanismus gleicht eher einer Kollision zwischen dem Tropfenspray und dem ruhenden Wasser im Bereich der Düsenöffnung.

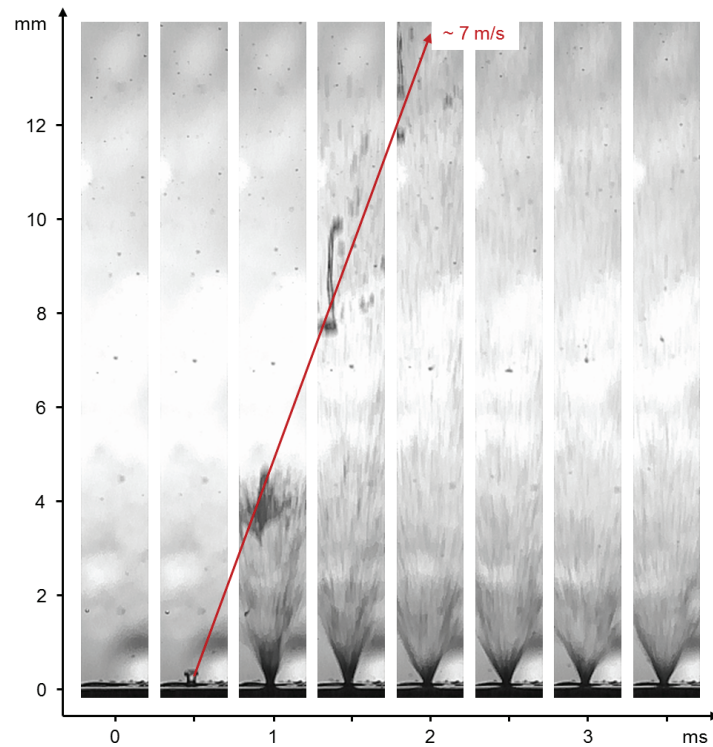


Abb. 5.12: Hochgeschwindigkeitsanalyse des Aufbaus des Sprühbildes bei pulsierender Einspritzung, Pulsbeginn zum Zeitpunkt $t = 0$

Abbildung 5.13 zeigt den Zusammenbruch des Sprühbildes nach der Abschaltung zum Zeitpunkt $t = T$. Im voll ausgebildeten Spray liegt die Strömungsgeschwindigkeit der Tropfen bei einem Düsenabstand von 7 mm bei etwa 40 m/s. Die Fluggeschwindigkeit wurde dabei aus der Tropfenspur und der *shutter-time* von 1/10000 s berechnet. In den ersten 4 ms nach Verschließen des Ventils bricht das Sprühbild zusammen. Der Zerfallsmechanismus der dritten Einspritzphase verschiebt sich dabei nach Abbildung 2.14 in den Bereich der Randwulst-Kontraktion. Aus der Spur der Tropfen lässt sich eine Abnahme der Strömungsgeschwindigkeit um mehr als die Hälfte, auf unter 20 m/s, ablesen. Der Tropfendurchmesser verdoppelt sich dabei im Vergleich zum voll ausgebildeten Spray.

Ab dem Zeitpunkt $T + 4$ ms zerfallen die Tropfen in der vierten Einspritzphase im Regim des Windinduzierten Zerfalls. Abbildung 5.14 zeigt die Strömung der entstehenden Tropfen. Die Tropfendurchmesser liegen in der Größenordnung des Düsenöffnungsdurchmesser. Die Strömungsgeschwindigkeit der Tropfen nimmt von etwa 2,7 m/s auf etwa 0,66 m/s ab.

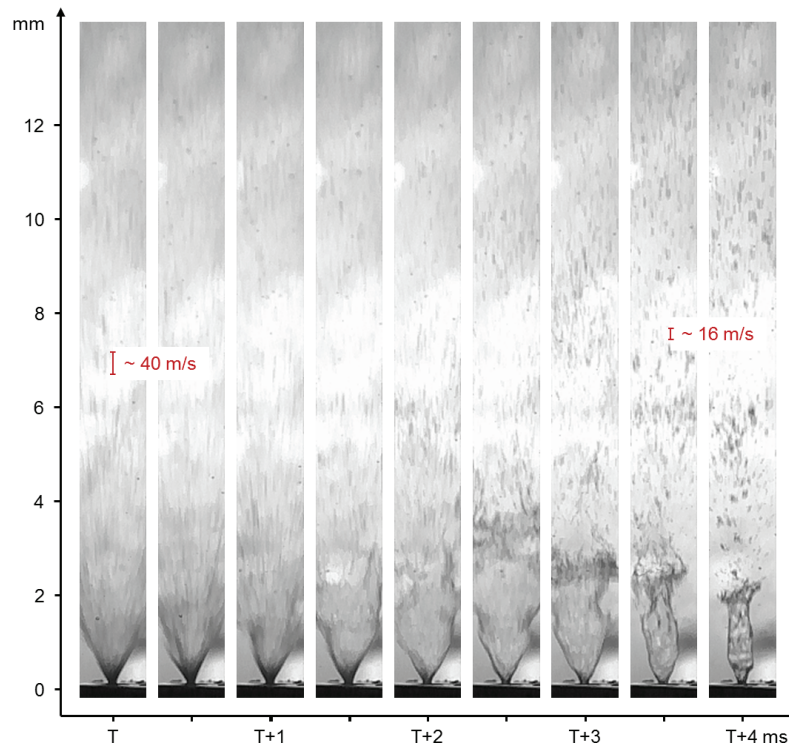


Abb. 5.13: Hochgeschwindigkeitsanalyse des Zusammenbruchs des Sprühbildes bei pulsierender Einspritzung Pulsende zum Zeitpunkt t

5.4.2 Ähnlichkeitstheoretische Anpassung der Modellparameter

Im vorangegangenen Abschnitt wurden die instationären Effekte einer pulsierenden Einspritzung experimentell an einem Prototypen der pulsierten Einspritzung untersucht. Im Versuchsaufbau wurde aus sicherheitstechnischen Gründen Wasser als zu zerstäubendes Fluid verwendet. Im Vergleich zu Kerosin zeichnet sich Wasser durch eine höhere Oberflächenspannung, eine höhere Viskosität und eine höhere Dichte aus. Die ermittelten charakteristischen Sprayeigenschaften müssen somit über einen Ähnlichkeitstheoretischen Ansatz auf die Einspritzung von Kerosin übertragen werden. Nach [16] liegt die Einspritztemperatur des Kerosins in den autothermen Reformern dabei im Temperaturbereich zwischen 40 °C und 60 °C. Eine Betrachtung der Weberzahlen der Einspritzung führt hierbei zu einem Tropfengrößenverhältnis in der Größenordnung von $d_{Kerosin, 60^\circ C} / d_{Wasser} = 0,33$. Nur durch die Weberzahl werden die unterschiedlichen Zerfallsmechanismen jedoch nicht ausreichend abgebildet.

Für die Ähnlichkeitstheoretische Anpassung der Modellparameter werden die vier betrachteten Einspritzphasen unterschieden. In der ersten Einspritzphase wird das ruhende Wasser in und auf der Düse durch eine „Kollision“ mit dem sich aufbauenden Sprühbild zerstäubt. Ab-

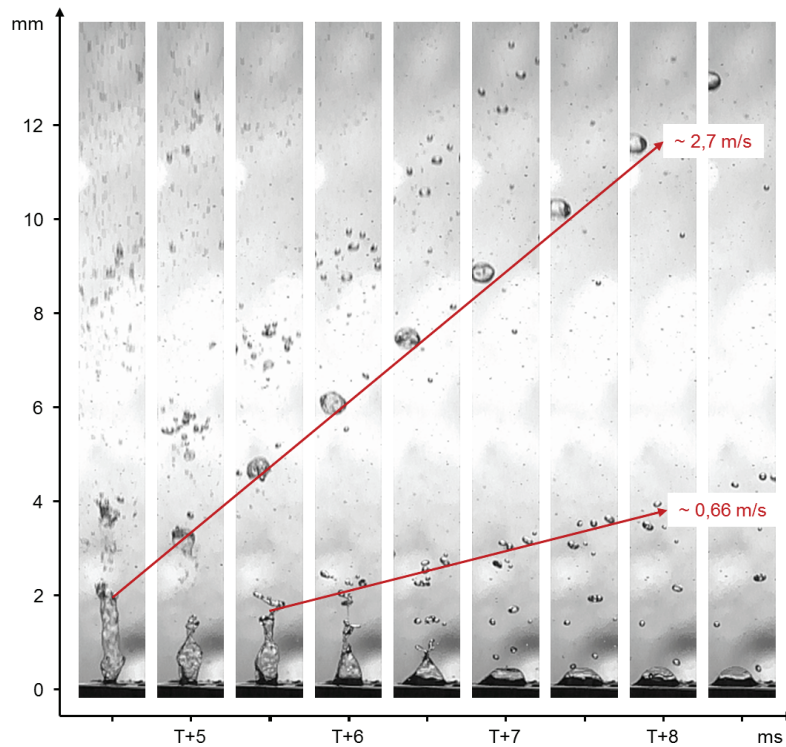


Abb. 5.14: Fortsetzung der Hochgeschwindigkeitsanalyse des Zusammenbruchs des Sprühbildes bei pulsierender Einspritzung Pulsende zum Zeitpunkt t

Abbildung 5.12 zeigt hierbei die Bildung einer Scheibe welche in der Strömung zerfällt. Dies entspricht dem Zerfallsmechanismus für Tropfenkollisionen bei hohen Weberzahlen in [135]. Die Scheibe zerfällt hierbei in Sekundärtropfen mit einem geringeren Durchmesser als die Ausgangstropfen. Nach Abbildung 5.12 liegt der Tropfendurchmesser der ersten Einspritzphase in der Größenordnung des halben Öffnungsdurchmessers. Für eine Übertragung der Tropfengröße auf geometrisch ähnliche Düsen wird daher das gemessene Durchmesser Verhältnis von $d_{\text{Tropfen}}/d_{\text{Düse}} = 0,5$ angenommen. Die Tropfengröße ist hierbei unabhängig von den Stoffwerten. Diese Annahme entspricht einem *worst-case*-Szenario. In der zweiten Einspritzphase ist das Sprühbild voll ausgebildet. Die Tropfengröße für Wasser wird für das Sprühbild aus den Herstellerangaben übernommen. Die Geometrie der Düse wird somit direkt berücksichtigt. Die Tropfengröße der Zerstäubung ist von der Oberflächenspannung und der Viskosität des Fluids abhängig. Analog zur Tropfengrößenberechnung nach Gleichung (5.3) wird hier ein Durchmesser Verhältnis von $d_{\text{Kerosin}, 60^\circ \text{C}}/d_{\text{Wasser}} = 0,67$ angenommen. In der dritten Einspritzphase verschiebt sich der Zerfallsmechanismus in den Bereich der Randwulst-Kontraktion. Aus der experimentellen Betrachtung lässt sich für diesen Bereich ein dimensionsloses Ge-

Tabelle 5.1: Instationäre Sprayparameter einer pulsierenden Einspritzung für eine Dralldruckdüse mit einer Öffnungsgröße von 0,15 mm

	Einspritzung		Wasser		Kerosin	
	Modell [–]	Sprühwinkel [°]	v_{Tropfen} [$\frac{m}{s}$]	d_{Tropfen} [μm]	v_{Tropfen} [$\frac{m}{s}$]	d_{Tropfen} [μm]
Phase 1	<i>single</i>	–	7	75	7	75
Phase 2	<i>cone</i>	30	50	25 - 30	50	15 - 20
Phase 3	<i>solid-cone</i>	5	20	15	20	30 - 40
Phase 4	<i>single</i>	–	2,7 - 0,66	75 - 150	2,7 - 0,66	150

schwindigkeitsverhältnis von $v_{\text{Zusammenbruch}}/v_{\text{Spruehbild}} = 0,4$ und ein Tropfengrößenverhältnis von $d_{\text{Zusammenbruch}}/d_{\text{Spruehbild}} = 0,5$, im Bezug auf das voll ausgebildete Sprühbild, herleiten. In der vierten Einspritzphase zerfallen die Tropfen ähnlich dem Windinduzierten Zerfall. Die Tropfengröße liegt in diesem Zerfallsregime in der Größenordnung des austretenden Strahls. Hieraus ergibt sich für diesen Bereich, unabhängig von den Stoffwerten, ein Durchmesser-verhältnis von $d_{\text{Tropfen}}/d_{\text{Duese}} = 1$. Tabelle 5.1 fasst auf Basis der ähnlichkeits-theoretischen Betrachtung, die Modellparameter von Wasser und Kerosin für eine Einspritzdüse mit einer Düsenöffnung von 0,15 mm zusammen. Unter der Annahme einer ähnlichen Düsengeometrie und eines ähnlichen Betriebsbereichs wurden die Tropfengeschwindigkeiten direkt der experimentellen Untersuchung entnommen.

5.5 Modellierung und Auslegung der pulsierenden Einspritzung am Fallbeispiel ATR 11

Im vorangegangenen Abschnitt wurden instationäre Simulationen der Strömungseffekte im ATR validiert sowie Modelle zur Beschreibung einer pulsierten Einspritzung hergeleitet. Somit stehen die geforderten Modelle zur Modellierung und Auslegung einer pulsierenden Einspritzung zur Verfügung. Im folgenden Abschnitt werden die hergeleiteten und validierten Modelle am Fallbeispiel der Einspritzung im ATR 11 angewandt.

5.5.1 Konzeptvalidierung

In einem ersten Schritt der CFD-Simulationen wurde die Mischkammer des ATR 11 mit der ersten vereinfachten UDF ohne Berücksichtigung der instationären Effekte simuliert. Die Mischkammer des Reaktors wurde dabei dreidimensional als periodisch wiederkehrendes 60 ° Element modelliert. Hieraus ergibt sich eine wiederkehrende achsensymmetrische Struktur in der Modellierung. Als Turbulenzmodell wurde das k- ϵ Modell gewählt. Der geeignete Betriebsbereich der pulsierenden Einspritzung liegt nach Angaben von [136] in der Größenordnung von 10 Hz bis 20 Hz. Die Standard-Dralldruckdüse im ATR 11 hat eine Düsenöffnung von 0,15 mm die

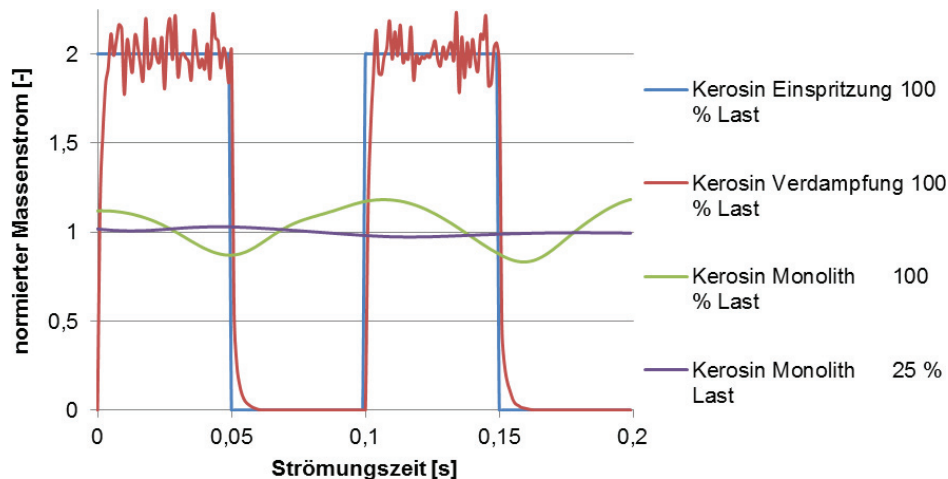


Abb. 5.15: Normierte Verläufe der Einspritzung, der Verdampfung und der Massenanteile am Monolitseintritt für 25 % Last und 100 % Last im ATR 11, Simulationsergebnis für eine Taktfrequenz von 10 Hz und eine Pulsweite von 50 ms

eine Modulierbarkeit zwischen 47 % und 120 % erlaubt. Im Betrieb ist die pulsierende Einspritzung für Volumenströme unter 0,0225 l/min vorgesehen, was einer Last von 50 % entspricht. Im Rahmen der Konzeptvalidierung soll eine ausreichende Qualität der Gemischbildung über den gesamten Lastbereich sichergestellt werden. Als *worst-case*-Analyse wurde die pulsierende Einspritzung bei 100 % Last und einer Taktfrequenz von 10 Hz untersucht. Die Pulsweite lag bei 50 ms. Abbildung 5.15 zeigt die Charakteristik der pulsierten Einspritzung für den *worst-case* Fall. Dargestellt ist der normierte, eingespritzte Kerosinmassenstrom, sowie die in der Mischkammer verdampfte Kerosinmasse über der Zeit. Der Verlauf des verdampfenden Massenstroms folgt dem Verlauf der eingespritzten Masse mit einem Versatz von etwa 4 ms. Der Versatz resultiert aus der durchschnittlichen Verdampfungszeit der Kerosintropfen. Der gezeigte Verlauf deutet auf ein ungleichmäßiges Einspritz- und Verdampfungsverhalten in der Mischkammer hin.

Abbildung 5.15 zeigt den zeitlichen Verlauf des normierten Kerosinmassenstroms am Monolitseintritt für 25 % und 100 % Last. Beide Verläufe pulsieren analog zur Einspritzung, mit einer Frequenz von 10 Hz. Aus dem Verweilzeitverhalten in der Reaktormischkammer folgt ein glatter Kurvenverlauf dessen Extremwerte im Vergleich zur Einspritzung um die hydrodynamische Verweilzeit des Kerosins versetzt sind. Der Kerosinmassenstrom bei 100 % Last alterniert dabei mit einer maximalen Abweichung in der Größenordnung von 148 % um den Sollwert. Abbildung 5.15 zeigt ebenfalls den Verlauf des Kerosinmassenstroms bei 25 % Last. Der Kurvenverlauf ist um die vierfach größere hydrodynamische Verweilzeit versetzt. Die maximale Abweichung liegt bei 3 % Prozent. Unter der Annahme eines linearen Zusammenhangs liegt somit die maximale Abweichung von bei 50 % Last bei etwa 8 % Prozent.

Die untersuchten Betriebsparameter stellen die minimale Pulsfrequenz und die maximale Pulsweite im Betrieb der Reaktoren dar. Mit sinkender Frequenz und höherer Pulsweite verringert sich die Verschlussdauer der Düse. Somit wird die Amplitude des Kerosinmassenstroms am Monolitheintritt verringert. Für die Gemischqualität ist die Verschlussdauer der Einspritzung ausschlaggebend. Die Taktfrequenz muss für die gewünschten Massenströme entsprechend angepasst werden. Um die genauen Betriebsparameter festzulegen, ist eine Berücksichtigung der instationären Effekte der Einspritzung notwendig.

5.5.2 Auslegung der pulsierten Einspritzung

Die Bilderfolge in Abbildung 5.16 zeigt den Verlauf des Sprühbildaufbaus im autothermen Reformer ATR 11 bei 25 % Last. Die Modellparameter der instationären Einspritzeffekte wurden entsprechend Tabelle 5.1 gewählt. Bereits nach 3 ms nach dem Öffnen des Ventils zum Zeitpunkt $t = 0$ ms, hat sich das Sprühbild vollständig ausgebildet. Die langsamen und größeren Tropfen der ersten Einspritzphase sind hierbei vom Dampfleitblech und Sprühbild der zweiten Einspritzphase überdeckt. Zum Zeitpunkt $t = 4$ ms verlassen die Tropfen der ersten Einspritzphase den Bereich des ausgebildeten Sprühbilds und strömen weiter in die Mischkammer. Hierbei verlangsamt sich die axiale Geschwindigkeit, wohingegen die Wirbelförmigen Strömungen im Reaktor eine radiale Geschwindigkeitskomponente hinzufügen. Etwa 9 ms nach Beginn der Einspritzung sind die Tropfen der ersten Einspritzphase vollständig verdampft. Hierbei sind die Tropfen weder in Kontakt mit der Außenwand, noch in den Eintrittsbereich des Monolithen gelangt.

Die Bilderfolge in Abbildung 5.17 zeigt den simulierten Verlauf des Zusammenbruchs des Sprühbilds im ATR 11. Zum Zeitpunkt $t = T + 2$ ms nach dem Schließen des Ventils sind die letzten Tropfen des vollausbildeten Sprühbildes verdampft. In den ersten 4 ms nach Verschluss des Ventils entstehen in der dritten Phase der Einspritzung die größeren und langsameren Tropfen des zusammenfallenden Sprühbildes. Diese Tropfen dringen um etwa den dreifachen Weg in die Mischkammer ein und bilden eine Nebelwolke im zentralen Bereich der vorderen Mischkammer. Nach 12 ms sind die Tropfen der dritten Einspritzphase vollständig verdampft. Beim Zusammenbrechen des Sprühkegels können Tropfen durch ein „flattern“ des zusammenfallenden Sprühkegels in einem größeren Einspritzwinkel ausgeworfen werden. In einem solchen Fall besteht die Gefahr, dass vereinzelte Tropfen an die Außenwand der Mischkammer gelangen und dort verdampfen.

Zum Zeitpunkt 4 ms nach Verschluss des Ventils beginnt für 2 ms die vierte Phase der Einspritzung. Vereinzelte Tropfen in der Größenordnung des Düsenöffnungsdurchmessers werden aus der Düse ausgeworfen. Die Abbildung 5.17 und 5.18 zeigen, wie sich diese Tropfen in der Mischkammer verteilen und verdampfen. Analog zu den Tropfen der ersten Einspritzphase bremst sich die axiale Geschwindigkeit der Tropfen bis zur Mitte der vorderen Mischkammer nahezu komplett ab. Die Tropfen werden im weiteren Strömungsverlauf durch die Hauptströmungen in der Mischkammer verteilt. Die eingespritzten Tropfen sind erst zum Zeitpunkt von $T = 50$ ms vollständig verdampft.

In der untersuchten pulsierenden Einspritzung haben keine Kerosintropfen die Wände der Mischkammer oder den Monolithen erreicht. Sämtliche Tropfen sind im vorderen Bereich der

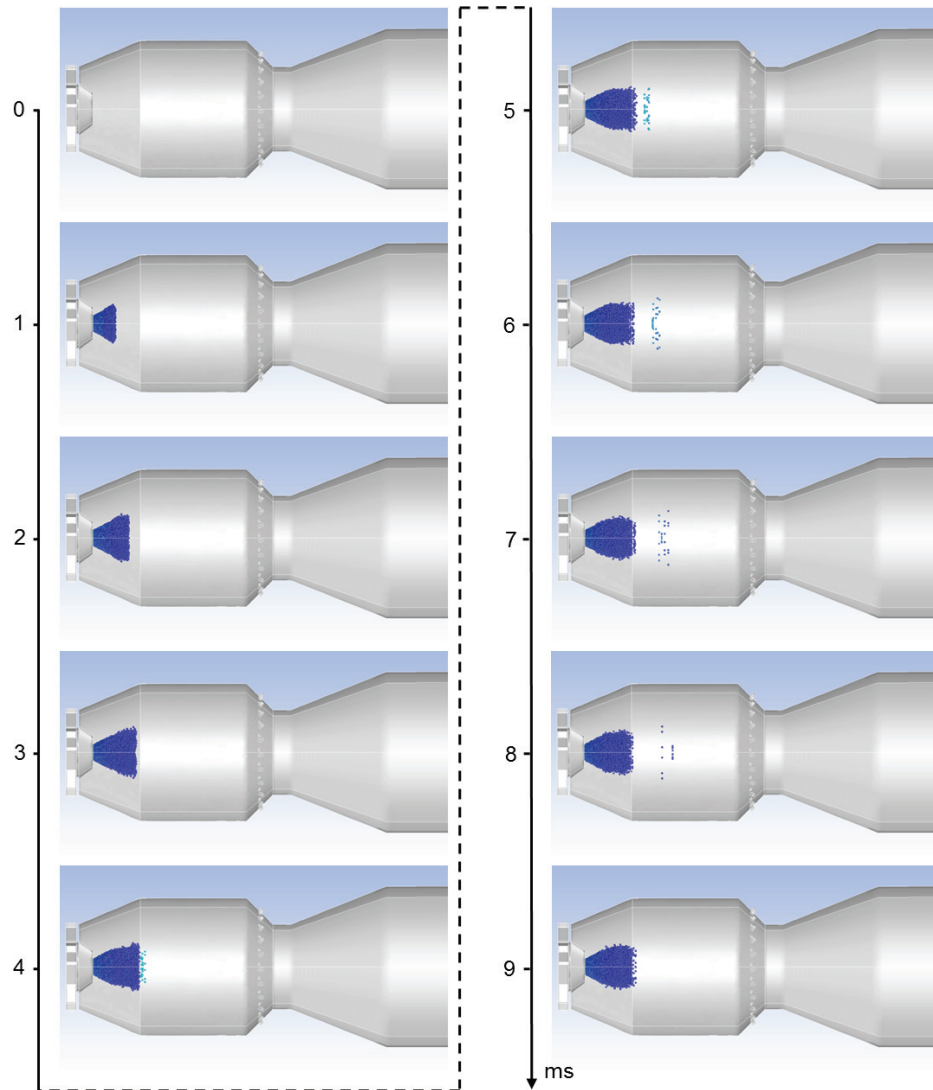


Abb. 5.16: Modellierter Verlauf des Aufbaus des Sprühbildes bei pulsierender Einspritzung, Pulsbeginn zum Zeitpunkt $t = 0$

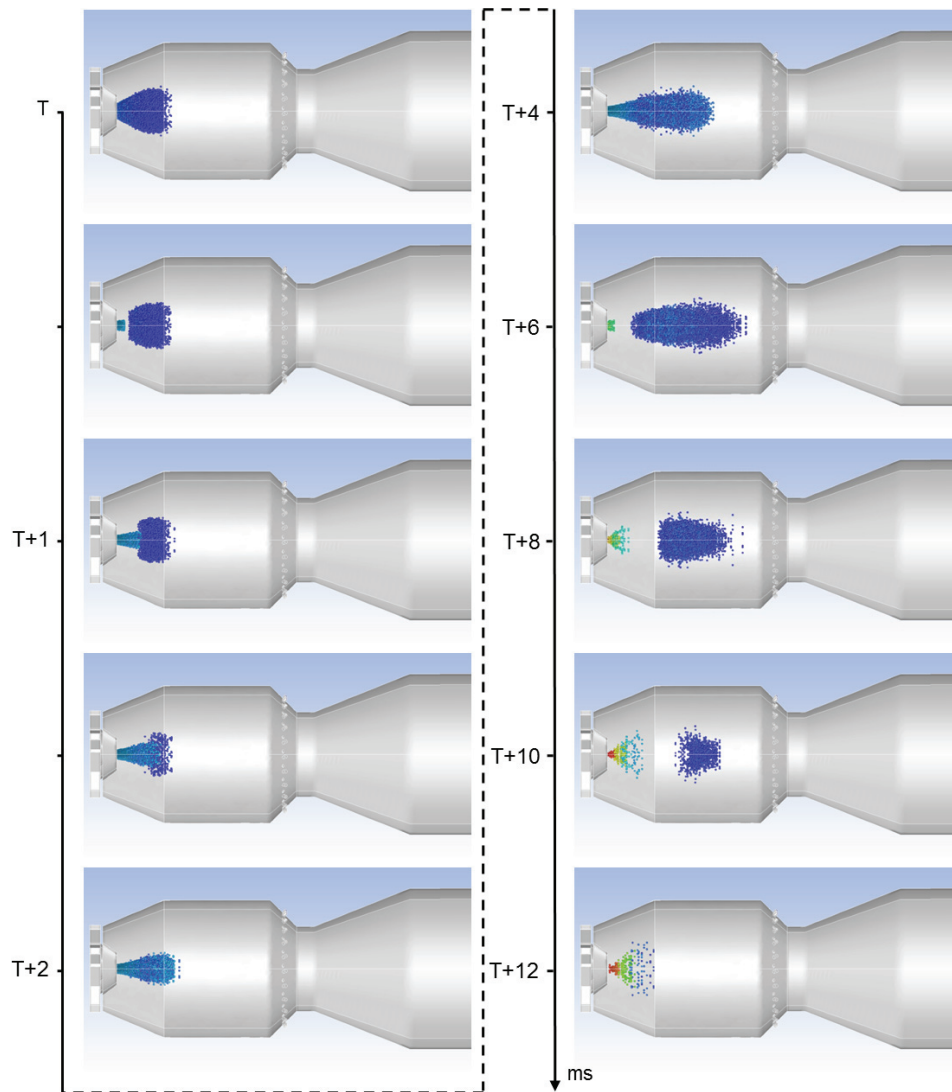


Abb. 5.17: Modellierter Verlauf des Zusammenbruchs des Sprühbildes bei pulsierender Einspritzung, Pulsende zum Zeitpunkt $t = T$

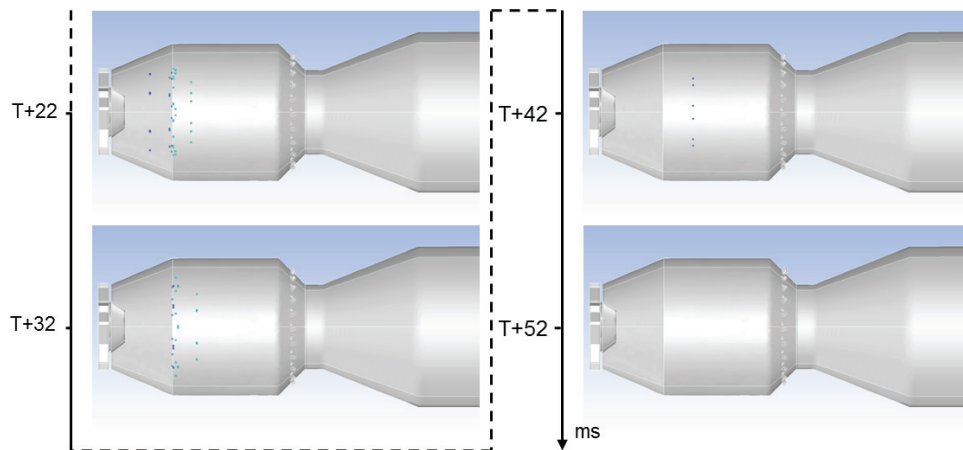


Abb. 5.18: Fortsetzung des modellierten Verlaufs des Zusammenbruchs des Sprühbildes bei pulsierender Einspritzung, Pulsende zum Zeitpunkt $t = T$

Mischkammer vollständig verdampft. Die gezeigte Untersuchung bei 25 % Last wurde analog im *worst-case* bei 100 % Last durchgeführt. Die entsprechenden Ergebnisse finden sich in Anhang B.4. Bei 100 % lässt sich qualitativ das selbe Einspritz- und Verdampfungsverhalten beobachten. Hierbei steigt für die Tropfen der ersten und der vierten Einspritzphase die Gefahr, dass vereinzelte unvollständig verdampfte Tropfen die Außenwand der vorderen Mischkammer erreichen und dort verdampfen. Die höheren Strömungsgeschwindigkeiten in der Mischkammer führen hier zu einem schnelleren radialen Transport der nicht verdampften Tropfen.

Aus der Konzeptvalidierung in Abbildung 5.15 und den diskutierten instationären Einspritzphänomenen lassen sich die optimalen Betriebsaparameter für die pulsierende Einspritzung ableiten. Generell ist die Verschlussdauer der Düse so gering wie möglich zu wählen, um eine über die Zeit gleichbleibende Gemischqualität zu gewährleisten. Gleichzeitig ist jedoch die Taktfrequenz so niedrig wie möglich zu wählen, um die instationären Effekte der Einspritzung zu minimieren. Nach den Abbildungen 5.16 bis 5.18 lässt sich eine optimale Verschlussdauer im Bereich von 20 ms bis 40 ms herleiten. Bei einer Verschlussdauer von 20 ms ist sichergestellt, dass sämtliche Tropfen der vorangegangenen Einspritzung den Bereich des vollausgebildeten Sprühbildes verlassen haben bevor der nächste Puls startet. Somit kommt es in diesem Bereich nicht zu Kollisionen und zur Agglomeration von Tropfen. Bei einer Verschlussdauer von 40 ms sind zusätzlich Kollisionen zwischen den Tropfen der ersten Einspritzphase und den Tropfen der vierten Einspritzphase der vorangegangenen Einspritzung ausgeschlossen. Die Wahrscheinlichkeit einer solchen Kollision ist jedoch aufgrund der geringen Tropfenanzahl wesentlich geringer. Bei 100 % Last liegt der optimale Bereich bei 20 ms bis 30 ms. Aus der Modellierung der pulsierenden Einspritzung, inklusive der instationären Sprayphänomene, lässt sich somit als optimaler Betriebspunkt eine Verschlusszeit von $\Delta t_V = 30$ ms ableiten. Die Taktfrequenz muss hierbei entsprechend der Last angepasst werden. Die Validierung dieser Ergebnisse erfordert in der weiteren Reaktorentwicklung Prototypentests der autothermen

Reformer mit pulsierenden Einspritzung. Im Rahmen von *post-mortem*-Analysen kann darauf aufbauend ein gegebenenfalls aufgetretener Kontakt zwischen Kerosintropfen und der Mischkammerwand nachgewiesen werden.

5.5.3 Zusammenfassende Bewertung der Modelle und Methoden

Aus dem weiten Betriebsbereich der HT-PEFC ergibt sich für das Brenngaserzeugungssystem eine geforderte Modulierbarkeit zwischen 25 % und 120 % des Auslegungspunktes. Diese Lastvariation ist in der Leistungsklasse bis zu 10 kW_{el} nicht mit kontinuierlich betriebenen Dralldruckdüsen zur Kraftstoffeinspritzung zu realisieren. Im ersten Schwerpunkt dieser Arbeit wurden somit weit modulierbare Einspritzsysteme betrachtet. Als Basis der Modellierung der Kraftstoffeinspritzung wurde ein Modellkraftstoff für Kerosin definiert. Die Siedetemperatur des Mehrkomponentengemischs wurde dabei in Abhängigkeit des verdampften Massenanteils bestimmt. Die Grundlage der CFD-Modellierung von Einspritzsystemen bilden Düsenmodelle in denen die charakteristischen Sprayparameter berechnet werden. Aufbauend auf der Standard-CFD-Modellbibliothek wurden Düsenmodelle zur CFD-Modellierung der Einspritzsysteme hergeleitet und validiert.

Als mögliche Konzepte zur Realisierung von weit modulierbaren Einspritzsystemen wurden Mehrdüsen- und pulsierende Einspritzsysteme identifiziert. Die CFD-Modellierung von Mehrdüsenkonzepten basiert auf der Standard-CFD-Modellbibliothek. Die Auslegung einer Mehrdüsen-Einspritzung wurde am Fallbeispiel des Wassergas-Shiftreaktors WGS 5 betrachtet. In diesem Reaktor in der Leistungsklasse 50 kW_{el} sind beide Shiftstufen und die Wassereinspritzung integriert. In den durchgeführten CFD-Simulationen wurde die Quenchstufe zwischen HTS-Stufe und NTS-Stufe untersucht und ausgelegt. Durch umfassende CFD-Simulationen konnte eine optimierte Mischkammergeometrie mit einem Mischkammerwirkungsgrad von etwa $\eta_{\text{Mischkammer}} = 16\%$ erreicht werden. Im Vergleich zu den autothermen Reformern ATR 7 und ATR 8 muss damit im System ein nur halb so großer Anteil der kinetischen Energie der Edukte zur Gemischbildung aufgebracht werden. Die maximale Abweichung des Wassermassenanteils vom Mittelwert am Monolitteintritt liegt dabei bei 25 % Last unter 6 % und bei 120 % Last unter 2 %.

Die Modellierung von pulsierenden Einspritzsystemen erforderte eine Erweiterung der CFD-Modellbibliothek. Hierzu wurden instationäre Einspritzeffekte mittels Hochgeschwindigkeitsmikroskopie untersucht. Als Einspritzsystem stand ein Düsen-Prototyp mit einem *rapid-reaction-valve* zur Verfügung. Auf Basis der experimentellen Untersuchungen wurde eine *user-defined-function* für die verwendete CFD-Software FLUENT hergeleitet und implementiert. Dabei wurden die experimentell hergeleiteten vier Phasen der instationären Einspritzung mittels eines Ähnlichkeitstheoretischen Ansatzes in ein allgemeines Modell überführt. Anhand dieses Modells wurde die pulsierende Einspritzung im ATR 11 modelliert und optimiert. In den Simulationen wurde der zeitliche Verlauf der Gemischqualität am Monolitteintritt aufgenommen. Die Simulationen wurden dabei mit der für den Pulsbetrieb minimalen Taktfrequenz von 10 Hz und der sich daraus ergebenden maximalen Pulsweite von 10 ms durchgeführt. In dem für die pulsierende Einspritzung relevanten Betriebsbereich unter 50 % Last wurde am Monolitteintritt eine maximale Abweichung des Kerosinmassenstroms von 8 % zum Mittelwert ermittelt. Das

5.5. Modellierung und Auslegung der pulsierenden Einspritzung am Fallbeispiel ATR 11

Konzept der pulsierenden Einspritzung konnte somit validiert werden. Unter Berücksichtigung der instationären Einspritzphänomene wurde dabei optimale Betriebsparameter einer pulsierenden Einspritzung hergeleitet. Die günstigste Verschlusszeit liegt in der Größenordnung von 30 ms, wobei sich die Taktfrequenz in Abhängigkeit von der Last ergibt. Das hergeleitete Ähnlichkeitstheoretische Modell dient zur Modellierung von Einspritzsystemen mit ähnlichen Düsencharakteristiken wie der im Experiment verwendete Prototyp einer Dralldruckdüse mit *rapid-reaction-valve*. Davon abweichende Einspritzsysteme erfordern eine Anpassung der Modellparameter auf Basis einer erneuten Hochgeschwindigkeitsanalyse.

6 Modellierung der chemischen Reaktionen

Die Reaktionszone bildet den Kern eines chemischen Reaktors nach Abbildung 1.2. In den Kernkomponenten der Brenngaserzeugung finden die Reaktionen heterogen katalysiert an einem monolithischen Katalysatorträger statt. Die Grundlagen der Beschreibung von katalytischen Oberflächenreaktionen wurde in Kapitel 2.1.3 diskutiert. In der CFD-Modellierung der Kernkomponenten bilden die chemischen Reaktionen den Übergang zwischen der Eduktaufbereitung und den integrierten Wärmeübertragern. Die Auslegung der Kernkomponenten mit CFD-Gesamtmodellen erfordert somit Modelle zur Einbindung der heterogen katalysierten Hauptreaktionen. Ziel dieser Arbeit ist dabei nicht die exakte Modellierung der komplexen Reaktionsmechanismen, sondern die Bereitstellung von vereinfachten Modellen und Methoden als Werkzeug in der Reaktormodellierung. Im Folgenden werden hierzu die mit den integrierten Wärmeübertragern in Wechselwirkungen stehenden Reaktionszonen der autothermen Reformierung und der katalytischen Brenner betrachtet. Neben den Hauptreaktionen werden in diesem Kapitel die exothermen Vorreaktionen im ATR untersucht und modelliert. Das Auftreten und die Intensität dieser Reaktionen werden stark durch das Reaktordesign beeinflusst.

6.1 Experimentelle Analyse der Reaktionsverläufe

Die numerischen Modellierungen der chemischen Reaktionen in den Kernkomponenten der Brenngaserzeugung basieren auf experimentell ermittelten Reaktionsverläufen. Hierzu wurden Prototypentests, auf Basis der Methode der statistischen Versuchsplanung, mit den Reaktoren ATR 9.1 [137], ATR 9.2 [138] und CAB 2.2 durchgeführt [139].

6.1.1 Statistische Untersuchung der autothermen Reformierung am Fallbeispiel ATR 9.2

Grundlage der Reaktionsmodellierung ist eine genaue Kenntnis des Reaktionsverhaltens in den chemischen Reaktoren. Im folgenden Abschnitt wird der Reaktionsverlauf der autothermen Reformierung am Fallbeispiel des ATR 9.2 diskutiert. Auf der Basis einer Ähnlichkeitstheoretischen Betrachtung der charakteristischen Randbedingungen der heterogenen Katalyse, lassen sich diese Ergebnisse auf die unterschiedlichen Reformergenerationen übertragen.

Im Rahmen einer statistischen Versuchsplanung wurde ein 2^3 Versuchsplan mit Zentralpunkt aufgestellt und in einem Prototypentest angewandt. Als Faktoren wurden die Last, das n_{O_2}/n_C -Verhältnis und das n_{H_2O}/n_C -Verhältnis berücksichtigt. Nach Tabelle 4.4 wurde die Last über den Kerosinmassenstrom in den zwei Stufen 1620 g/h und 2700 g/h, das n_{O_2}/n_C -Verhältnis

Tabelle 6.1: Ergebnisse des Faktorstufentests des Prototypen des ATR 9.2 [138]

	Versuchsparameter			Versuchsergebnisse					
	\dot{m}_{Kerosin} [g/h]	$n_{\text{O}_2}/n_{\text{C}}$ [-]	$n_{\text{H}_2\text{O}}/n_{\text{C}}$ [-]	T_{MK} [°C]	$T_{-5\text{mm}}$ [°C]	$T_{5\text{mm}}$ [°C]	$T_{10\text{mm}}$ [°C]	$T_{75\text{mm}}$ [°C]	$T_{140\text{mm}}$ [°C]
4	1620	0,43	1,7	230	384	736	641	645	647
3	1620	0,43	1,9	237	542	721	632	644	647
5	1620	0,47	1,7	234	396	794	681	679	680
9	1620	0,47	1,9	241	422	792	672	677	679
1	2160	0,45	1,8	237	380	818	657	659	663
6	2160	0,45	1,8	236	377	821	657	659	663
11	2160	0,45	1,8	234	374	826	657	658	664
10	2700	0,43	1,7	234	355	834	647	641	654
7	2700	0,43	1,9	240	371	815	637	646	656
2	2700	0,47	1,7	240	375	880	685	688	692
8	2700	0,47	1,9	242	375	885	679	685	690

in den Stufen 0,43 und 0,47 sowie das $n_{\text{H}_2\text{O}}/n_{\text{C}}$ -Verhältnis in den Stufen 1,7 und 1,9 variiert. Tabelle 6.1 zeigt die Ergebnisse des Faktorstufentests für GTL-Kerosin.

Die Reformatzusammensetzung kann im Prototypentest nur am Reaktoraustritt bestimmt werden. Um einen Rückschluss auf den Verlauf der Reaktionen zu ermöglichen, wurde die Gemischtemperatur im Vorlauf des Monolithen an der Position -5 mm sowie im Monolithen an den Positionen 5 mm, 10 mm, 75 mm und 140 mm gemessen. Der qualitative Verlauf der Reformtemperatur deckt sich mit den Prototypentests der Reaktoren ATR 5 bis ATR 8 [16, 32]. Direkt am Monolithenintritt wird das Reaktionsverhalten durch die Reaktionsraten der POX und TOX Reaktionen dominiert. Auf den ersten Millimetern des Monolithen wird der Sauerstoff vollständig umgesetzt. Das Temperaturprofil zeigt die maximale Gemischtemperatur an der 5 mm Position im Monolithen. Die gemessene Temperatur hängt dabei stark von der genauen Position des Thermoelements ab. Bei 100 % Last und einem $n_{\text{O}_2}/n_{\text{C}}$ -Verhältnis von 0,47 liegt die Temperatur im Bereich der erwarteten Maximaltemperatur von etwa 900 °C. Bei einer Abnahme des $n_{\text{O}_2}/n_{\text{C}}$ -Verhältnis von 0,47 auf 0,43 sinkt die gemessenen Maximaltemperatur um 46 K bis 73 K. Eine signifikante Abhängigkeit der Maximaltemperatur vom $n_{\text{H}_2\text{O}}/n_{\text{C}}$ -Verhältnis lässt sich anhand der Messwerte nicht herleiten. Mit sinkender Last nimmt die gemessene Maximaltemperatur um bis zu 98 K ab. Dieser Effekt lässt sich auf die mit der Last sinkenden Strömungsgeschwindigkeit und der daraus resultierenden Verschiebung des Temperaturprofils zurückführen. Bis zum 10 mm Messpunkt kommt es, infolge der endothermen Dampfreformierung, zu einer Temperaturabnahme um bis zu 206 K im Bezug auf die gemessene Maximaltemperatur. Zwischen der 10 mm Position und dem Monolithaustritt weichen die für die jeweiligen Parameterkombinationen gemessenen Temperaturen um maximal 2,9 % voneinander ab. In den Betriebspunkten 5 und 10 wird dabei die minimale Temperatur im Monolithen an der 75 mm Position gemessen, in den anderen Betriebspunkten hingegen 10 mm hinter dem Monolithenintritt. Die Austrittstemperaturen liegen bei 647 °C bis 692 °C. Eine Steigerung des

n_{O_2}/n_C -Verhältnis führt hier ebenfalls zu einer erhöhten Austrittstemperatur.

Die gemessenen Temperaturprofile lassen keinen vollständigen Schluss auf den Temperaturverlauf im Monolithen zu. Die Anzahl der Messpunkte ist hierzu zu gering. So lässt sich beispielweise nicht erkennen, ob zwischen den Messpositionen bei 10 mm und 75 mm deutlich niedrigere Temperaturen infolge der Dampfreformierung erreicht werden. Eine weitere Fehlerquelle ergibt sich aus der ungenauen Positionierung der Thermoelemente im Monolithen. Eine umfassende Auswertung des Faktorstufentests findet sich in [138].

6.1.2 Statistische Untersuchung der exothermen Vorreaktionen am Fallbeispiel ATR 9.2

Das Auftreten und die Intensität von exothermen Vorreaktionen wurde im Experiment über die Gemischtemperatur in der Mischkammer erfasst. Hierzu wurde die Temperatur im Bereich der Kraftstoffverdampfung sowie im Vorlauf des Monolithen an der Position -5 mm gemessen. Aus den Edukttemperaturen von $T_{Luft} = 30\text{ °C}$ und $T_{Dampf} = 420\text{ °C}$ ergibt sich, je nach Betriebspunkt, eine adiabate Gemischtemperatur der Größenordnung von 200 °C . Tabelle 6.1 zeigt im Bereich der Kraftstoffverdampfung eine durchschnittliche Temperatur von 236 °C bis 239 °C . Da an dieser Position erst ein Teilstrom der Luft in das Gemisch eingegangen ist, liegen die ermittelten Temperaturen über der adiabaten Gemischtemperatur. Die durchschnittliche Gemischtemperatur im Monolithvorlauf liegt bei 80 % Last bei 377 °C und bei 100 % Last bei 369 °C . Die Temperaturerhöhung zwischen den beiden Lastbereichen ohne Vorreaktionen resultiert aus der Wärmeübertragung durch die metallische Mischkammerwand sowie dem konduktiven und konvektiven Wärmetransport im Gasgemisch vor dem heißen Monolithen. Die durchschnittliche Vorlauftemperatur bei 60 % Last liegt mit 436 °C deutlich über den Werten bei höherer Last. Tabelle 6.1 zeigt die maximalen Temperaturen im Monolithvorlauf bei einem n_{H_2O}/n_C -Verhältnis von 1,9. Für ein n_{O_2}/n_C -Verhältnis von 0,43 liegt die gemessene Temperatur hier bei 542 °C und für ein n_{O_2}/n_C -Verhältnis von 0,47 bei 422 °C . Der im Vergleich zu den anderen Betriebspunkten starke Temperaturanstieg deutet auf das Auftreten von exothermen Vorreaktionen hin. Haupteinflussfaktor ist das n_{H_2O}/n_C -Verhältnis, da mit steigendem Massenstrom des überhitzten Dampfes der Wärmeeintrag in die Mischkammer zunimmt. Beim Auftreten einer Vorreaktion führt ein steigendes n_{O_2}/n_C -Verhältnis zu einer schnelleren Reaktionskinetik und zu einem theoretisch höheren Umsatz der Kohlenwasserstoffe. Gleichzeitig nimmt jedoch mit steigendem Luftstrom die Verweilzeit des Gasgemischs in der Mischkammer ab. Exotherme Vorreaktionen in der Mischkammer haben keinen Einfluss auf die Reformatzusammensetzung und die Temperatur am Monolithaustritt [37].

Abbildung 6.1 zeigt den zeitlichen Temperaturverlauf des Gasgemischs an der -5 mm Position im Vorlauf des Monolithen. Dargestellt ist das Verhalten der Reaktoren ATR 9.1 und ATR 9.2 für die Parameterkombinationen 3 und 8 nach Tabelle 6.1. Das Mischkammerdesign des ATR 9.2 ist ein *scale-up* des ATR 9.1, somit ist das Strömungsverhalten ähnlich. Aufgrund der zur Verfügung stehenden Bohrer ist der Durchmesser des Monolithen im ATR 9.2 um etwa 4 % geringer in Bezug auf eine Ähnlichkeit der Geometrie. Hierdurch ergibt sich eine leicht abweichende Strömung im Monolithvorlauf. Das charakteristische Strömungsverhalten ist jedoch identisch. Die untere Mischkammer des ATR 9.1 besteht im Gegensatz zum metal-

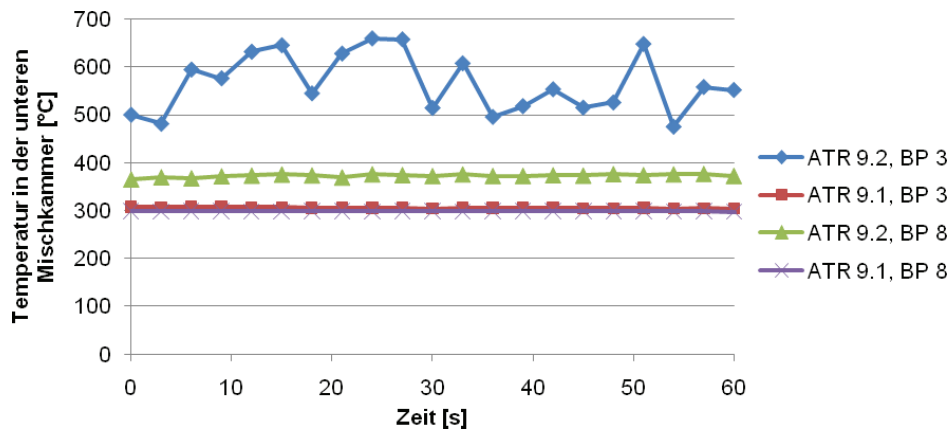


Abb. 6.1: Instationärer Temperaturverlauf der exothermen Vorreaktion im Monolithvorlauf der Reaktoren ATR 9.1 und ATR 9.2 [137]

lischen Mischkammer des ATR 9.2 aus einer Keramik. Somit weisen die beiden Reaktoren ein abweichendes Wärmeübertragungsverhalten für den Bereich der Kraftstoffverdampfung auf. Die Edukttemperaturen lagen im Faktorstufentest des ATR 9.1 bei einer Dampftemperatur von 460 °C und einer Lufttemperatur von 23 °C und im Faktorstufentest des ATR 9.2 bei einer Dampftemperatur von 420 °C und einer Lufttemperatur von 30 °C. Die adiabate Gemischtemperatur im ATR 9.1 liegt aufgrund der höheren Dampfeintrittstemperatur um etwa 15 K über der des ATR 9.2. Im ATR 9.1 liegt die Vorlauftemperatur für beide Betriebspunkte bei etwa 300 °C. Im ATR 9.2 liegt die Vorlauftemperatur im Betriebspunkt 8 ohne Vorreaktion, trotz der geringeren adiabaten Gemischtemperatur, um 77 K über der entsprechenden Temperatur im ATR 9.1. Ein Vergleich der Gemischtemperaturen im Bereich der Kraftstoffverdampfung zeigt, dass diese Temperaturzunahme nicht auf eine stärkere Wärmeübertragung durch die metallische Mischkammer des ATR 9.2 zurückzuführen ist. Im Reaktordesign verhindert die Verteilerkammer der kalten Luft Wärmebrücken zwischen dem heißen Reformat und der kälteren unteren Mischkammer. Da sich die beiden Reaktoren in ihrer Gesamtkonstruktion unterscheiden variieren die interne Wärmeströme. So beeinflusst das Wärmeübertragerdesign die Edukttemperatur, da eine direkte Wärmeübertragung zwischen dem heißen Reformat im inneren Ringspalt und dem Gasgemisch im Vorlauf des Monolithen stattfindet. Die gemessene Temperaturdifferenz zwischen den Reaktoren kann ebenso aus einer abweichenden Position der Messpunkte im Monolithvorlauf, sowie aus einem geänderten Strömungsverhalten im Monolithvorlauf, resultieren.

Im Betriebspunkt 3 treten im ATR 9.2 die diskutierten exothermen Vorreaktionen auf. Abbildung 6.1 zeigt hier ein stark instationäres Verhalten. Die Temperatur variiert dabei sprunghaft zwischen etwa 490 °C und 650 °C. Der Temperaturanstieg auf über 490 °C lässt sich, aufgrund des in Abbildung 2.2 gezeigten negativen Temperaturkoeffizienten, nicht auf den Reaktionsmechanismus der kalten Flamme zurückführen. Der Temperaturabstieg resultiert somit aus der

Selbstzündung des Gemischs mit anschließender Partiellen oder Total-Oxidation. Der alternierende Verlauf der Temperatursprünge deutet auf die Effekte einer Hochtemperaturzündung hin [22]. Aus Abbildung 6.1 lässt sich eine Selbstzündungstemperatur des GTL Kerosins von etwa 490 °C herleiten.

6.1.3 Statistische Untersuchung der katalytischen Verbrennung am Fallbeispiel CAB 2.3

Im katalytischen Brenner werden die im Anodenabgas enthaltenen Komponenten H_2 , CO und CH_4 an einem heterogenen Katalysator oxidiert. Das Betriebsverhalten des katalytischen Brenners CAB 2.3 wurde ebenfalls im Rahmen einer statistischen Versuchsplanung untersucht [139]. Das Hauptaugenmerk der Experimente lag hierbei auf dem Verdampfungsverhalten des integrierten Wärmeübertragers. Dementsprechend wurde kein Temperaturprofil über den Verlauf des Monolithen ermittelt. Die Temperatur wurde lediglich in der Mitte sowie im Vorlauf und im Nachlauf des Monolithen gemessen. Anhand der Temperaturmessung im Vorlauf des Monolithen konnte gezeigt werden, dass keine Vorreaktionen auftreten. Abbildung 6.2 zeigt die Abhängigkeit des Temperaturverlaufs von der Luftzahl λ . Die Messung erfolgte an drei Messpunkten im Monolithvorlauf, im Monolithen und im Monolithnachlauf. Hierbei wurde der katalytische Brenner bei 100 % Last und der maximalen Wassermenge, nach Tabelle 4.4, betrieben. Abweichend davon liegt der dargestellte Betriebspunkt für $\lambda = 1,6$ bei etwa 85 % Last, jedoch der selben maximalen Wassermenge. Das Verdampfungsverhalten in diesem Betriebspunkt wird in Kapitel 7 genauer behandelt. Die maximale Temperatur im katalytischen Brenner wird für $\lambda = 1$ erreicht. Für $\lambda > 1$ nimmt die Maximaltemperatur ab. Der zunehmende Massenstrom führt, durch die konstante Wärmemenge des vollständigen Umsatzes, zu einer geringeren Temperaturzunahme. Für $\lambda < 1$ sinkt die Maximaltemperatur aufgrund des unvollständigen Umsatzes der Edukte. Bei $\lambda = 0,95$ konnten im Produktgas kein Methan, jedoch geringe Mengen Kohlenmonoxid und Wasserstoff nachgewiesen werden. Die genauen Mengen waren hierbei aufgrund der Messgenauigkeit nicht genau bestimmbar. Für alle λ liegt die Temperatur in der Monolithmitte, trotz der Wärmeverluste über die Monolithlänge, in der Größenordnung von 10 K unter der Monolithaustrittstemperatur. Dies ist auf einen unvollständigen Umsatz der Edukte an dieser Position zurückzuführen. Eine umfassende Auswertung des Faktorstufentests findet sich in [139].

6.2 Modellierung der inhomogenen katalytischen Hauptreaktionen

Auf der Basis der bisher diskutierten, experimentell ermittelten Reaktionsverläufe, werden im folgenden Unterkapitel Modellierungsansätze der heterogenen Reaktionen vorgestellt und hergeleitet.

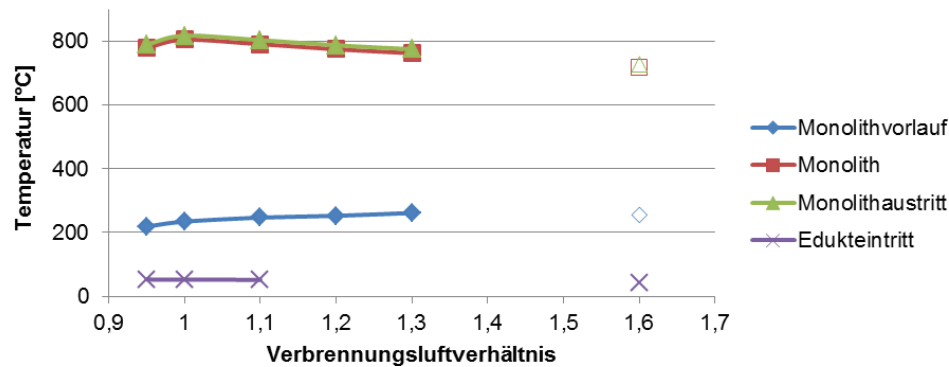


Abb. 6.2: Temperaturverlauf im katalytischen Brenner CAB 2.3 in Abhängigkeit von der Luftzahl [139]

6.2.1 Monolithcharakterisierung

Die Reaktionszonen der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung werden im CFD-Modell als poröse Körper modelliert. Die zugrunde liegenden Modelle sind in Kapitel 3.4.5 beschrieben. Um eine möglichst großflächige und gleichmäßige Verteilung des Katalysators im Strömungsvolumen zu gewährleisten, werden in den Reaktoren der Brenngaserzeugung Monolithen aus Cordierit als Katalysatorträger verwendet. Die Monolithen weisen eine gleichmäßige Wabenstruktur mit rechteckigem Kanalquerschnitt auf. Die Kanaldichte im ATR beträgt 600 cpsi (*cells per square inch*), im CAB 400 cpsi. Um die spezifische Oberfläche des Katalysatorträgers zu erhöhen, sind die Kanäle mit einem Al_2O_3 Washcoat mit Porenstruktur beschichtet. Der eigentliche Katalysator wird in möglichst kleinen Partikeln auf die Washcoatoberfläche aufgebracht. In den Reaktoren der Brenngaserzeugung werden kommerzielle Edelmetallkatalysatoren verwendet. Eine Charakterisierung ähnlicher Katalysatoren findet sich in [140–142]. Hier wurde die katalytische Partialoxidation an seriennahen Modellkatalysatoren der Firmen Umicore AG & Co. KG und Delphi Catalyst Inc. untersucht. Zur genauen Modellierung der chemischen Reaktionen über die Reaktionsrate, ist die Kenntniss der katalytisch aktiven Oberfläche erforderlich. In [142] wird ein Verhältnis zwischen aktiver Katalysatoroberfläche und geometrischer Oberfläche von $F_{Kat/Geo} = 143$ angegeben. Da die aktive Oberfläche der verwendeten Katalysatoren nicht genau bekannt ist, bezieht sich diese Arbeit auf das Verhältnis aus Oberflächen und Volumen Verhältnis (A/V) des unbeschichteten Cordierit Monolithen. Aus der Stegbreite von 4/1000 Inch ergibt sich für einen 600 cpsi Monolithen ein A/V -Verhältnis von $A/V = 3409 \text{ m}^2/\text{m}^3$. Über das A/V -Verhältnis wird aus dem volumenbezogenen Reaktionsquellterm nach Gleichung (3.24), der flächenbezogene Quellterm der katalytischen Oberflächenreaktionen im Monolithen abgeleitet. Hierbei ist zu beachten, dass die Reaktionskinetik auf die gewählte Bezugsfläche angepasst werden muss. Die im Rahmen dieser Arbeit hergeleiteten Modellreaktionen sind auf das A/V -Verhältnis des unbeschichteten Katalysatorträgers bezogen und an experimentelle Ergebnisse angepasst. Daraus resultierend werden im Modell höhere Reaktionsraten angenommen, um die geringere aktive Fläche auszugleichen. Eine Reak-

Tabelle 6.2: CFD-Modellparameter der Monolithe

Monolith [cpsi]	A/V [$\frac{m^2}{m^3}$]	Porosität [–]	$1/\alpha$ [$\frac{1}{m^2}$]	$1/C_2$ [$\frac{1}{m}$]
400	2898	0,66	70287293	0
600	3409	0,64	41323282	0

tionsmodellierung auf der Basis einer bekannten realen aktiven Katalysatoroberfläche erfordert somit die Anpassung der Modellparameter, insbesondere der präexponentiellen Faktoren.

Das Strömungsverhalten in den Monolithen wird durch die Porosität und den Strömungswiderstand bestimmt. Beide Faktoren haben direkten Einfluss auf den Reaktionsverlauf. Die Strömungsgeschwindigkeit im Monolithen berechnet sich aus dem Quotient der Anströmgeschwindigkeit im freien Querschnitt und der Porosität. Um das Verweilzeitverhalten im Monolithen korrekt darzustellen, wird im CFD-Modell mit der physikalischen Geschwindigkeit gerechnet. Die Porosität des unbeschichteten Monolithen liegt bei 0,85 bei 400 cpsi und bei 0,81 bei 600 cpsi. Unter der Annahme, dass sich durch die Beschichtung ein kreisförmiger Kanalquerschnitt mit einem Durchmesser entsprechend der ursprünglichen Kantenlänge ergibt, liegt die Porosität im 600 cpsi Monolithen bei 0,64. Der Strömungswiderstand beeinflusst das Strömungsverhalten im Monolithvorlauf. Der Strömungswiderstand im porösen Körper wird über Gleichung (3.49) eingebunden. Die Faktoren $1/\alpha$ und $1/C_2$ wurden dazu experimentell über eine Druckverlustmessung ermittelt. Hierbei ist darauf zu achten, dass die Strömungswiderstände in porösen Körpern in FLUENT generell in Bezug auf die Strömungsgeschwindigkeit im freien Querschnitt berechnet werden. Der Versuchsaufbau der Druckverlustmessung wird in Anhang C.1 vorgestellt. In der porösen Kanalstruktur strömt das Gasgemisch linear, so dass der quadratische Term der Darcy-Forchheimer Gleichung vernachlässigt werden kann. Tabelle 6.2 fasst die Modellparameter der 400 cpsi und 600 cpsi Monolithe zusammen.

Das Temperaturprofil im Monolith wird neben dem Reaktionsverlauf auch durch die Wärmeleitfähigkeit des Katalystorträgers und des *washcoat* beeinflusst. Die Wärmeleitfähigkeit von Cordierit liegt zwischen 1,5 W/m/K und 2,5 W/m/K, die von Aluminiumoxid zwischen 14 W/m/K und 30 W/m/K [143]. In dieser Arbeit wird, aufgrund der porösen und gebrochenen Struktur des *washcoat* eine Wärmeleitfähigkeit von $\lambda = 2,5$ W/m/K angenommen.

6.2.2 Modellierung der Reaktionskinetik

In der Literatur finden sich vielfältige Ansätze zur Beschreibung der Reaktionskinetiken der autothermen Reformierung und der katalytischen Verbrennung. Dabei werden in der Regel der Arrhenius-Ansatz nach Gleichung (2.16) in Kombination mit experimentell angepassten Kinetikansätzen der Reaktionsraten verwendet. Die Modellierung der heterogen katalysierten Reaktionen unterscheidet sich dabei im Detaillierungsgrad. Unter anderem in [36, 144, 145] werden die einzelnen Elementarreaktionen der Reaktionskomplexe aufgelöst. Analog zu Gleichung (2.16) wird die Reaktionsrate r_i der i -ten Reaktion als Funktion der Konzentrationen der Reaktanten und der Temperatur T angegeben:

Tabelle 6.3: Reaktionsmechanismus der autothermen Reformierung nach [147]

Reaktion	Reaktionsrate	A_i	E_A
	$\left[\frac{\text{kmol}_{C_{16}H_{34}}}{\text{m}^2 \text{s}} \right]$		$\left[\frac{\text{kJ}}{\text{mol}} \right]$
$C_{16}H_{34} + 24,5O_2 \rightarrow 16CO_2 + 17H_2O$	$r_1 = \frac{k_1 P_{C_{16}H_{34}} P_{O_2}^{0,5}}{(1 + K_{C_{16}H_{34}} P_{C_{16}H_{34}} + K_{O_2} P_{O_2}^{0,5})^2}$	$8,11 \cdot 10^6$	86
$C_{16}H_{34} + 16H_2O \rightarrow 16CO + 33H_2$	$r_2 = \frac{k_1 (P_{C_{16}H_{34}} - P_{H_2}^3 P_{CO} / P_{H_2O} K_{e2})}{P_{H_2O}^{0,6}}$	$9,69 \cdot 10^7$	240,1
$CO + H_2O \rightarrow CO_2 + H_2$	$r_3 = k_3 (P_{CO} - P_{H_2} P_{CO_2} / P_{H_2O} K_{e3})$	2,5	54,5
$C_{16}H_{34} + 32H_2O \rightarrow 16CO_2 + 49H_2$	$r_4 = \frac{k_1 (P_{C_{16}H_{34}} - P_{H_2}^4 P_{CO_2} / P_{H_2O}^2 K_{e4})}{P_{H_2O}^{0,3}}$	$1,0 \cdot 10^9$	243,9

chung (3.30) werden die Komponenten der Gasphase, die an der Oberfläche adsorbierten Komponenten (*site*) und die Materialkomponenten der Oberfläche (*bulk*) berücksichtigt. Die komplexe Modellierung ermöglicht eine grundlegende Analyse des Reaktionsverhaltens. Dies erfordert die genaue Kenntnis der grundlegenden Reaktionsmechanismen sowie einen umfassenden experimentellen Datensatz zur Modellbildung und Validierung. Da der Fokus dieser Arbeit auf der Modellierung im Rahmen eines Reaktorentwicklungsprozesses liegt, wird im folgenden auf vereinfachte Modelle zurückgegriffen. Dieser zweite Modellierungsansatz basiert auf der Betrachtung des Reaktionskomplexes über charakteristische Hauptreaktionen nach Gleichung (3.25). Die eigentlichen Elementar- und Oberflächenreaktionen werden nicht abgebildet.

Autotherme Reformierung

Arbeiten zur CFD-Reaktionsmodellierung der autothermen Reformierung anhand der charakteristischen Hauptreaktionen finden sich in [146–150]. Ein umfassendes Beispiel für einen solchen Ansatz wird in [147] hergeleitet und ist in Tabelle 6.3 dargestellt. Das Reaktionsmodell umfasst hierbei vier Hauptreaktionen zur autothermen Reformierung von n-Hexadecan. Dabei werden die WGS-Reaktion und zwei SR-Reaktionen als Gleichgewichtsreaktionen modelliert. Die in Tabelle 6.3 gezeigten Reaktionsmechanismen zur Berechnung der Reaktionsraten beinhalten die Faktoren k_{e2} , k_{e3} und k_{34} als Gleichgewichtskonstanten der entsprechenden Reaktionen, sowie die Faktoren $K_{C_{16}H_{34}}$ und K_{O_2} als Konstanten des Adsorptionsgleichgewichts der entsprechenden Komponenten. Die Validierung mit experimentellen Daten in [147] lieferte eine maximale Modellgenauigkeit des Stoffmengenanteils von 16,8 % für H_2 , von 17,3 % für CO_2 und von 16,0 % für CO . Die maximale Abweichung des simulierten Temperaturverlaufs im Monolith lag unter 11,6 %. Nach [147] ist diese Modellgenauigkeit zur Anwendung in der Konstruktion ausreichend. Die ermittelten Werte werden somit als Referenz zur Beurteilung der im Folgenden hergeleiteten vereinfachten Modelle verwendet.

Tabelle 6.4: Reaktionsmechanismus der Totaloxidation und der katalytischen Verbrennung nach [125]

	Reaktion	Reaktionsrate $\left[\frac{\text{kmol}}{\text{m}^2 \cdot \text{s}}\right]$	A_i	E_A $\left[\frac{\text{kJ}}{\text{mol}}\right]$
TOX	$\text{C}_{12}\text{H}_{23} + 17,75\text{O}_2 \rightarrow 12\text{CO}_2 + 11,5\text{H}_2\text{O}$	$r_5 = k_5 \cdot c_{\text{C}_{12}\text{H}_{23}}^{0,25} \cdot c_{\text{O}_2}^{1,5}$	$2,587 \cdot 10^9$	125,6
CAB	$\text{CH}_4 + 2\text{O}_2 \rightarrow \text{CO}_2 + 2\text{H}_2\text{O}$	$r_6 = k_6 \cdot c_{\text{CH}_4}^{0,2} \cdot c_{\text{O}_2}^{1,3}$	$2,119 \cdot 10^{11}$	202,7
	$\text{CH}_4 + 1,5\text{O}_2 \rightarrow \text{CO} + 2\text{H}_2\text{O}$	$r_7 = k_7 \cdot c_{\text{CH}_4}^{0,7} \cdot c_{\text{O}_2}^{0,8}$	$5,012 \cdot 10^{11}$	200
	$\text{H}_2 + 0,5\text{O}_2 \rightarrow \text{H}_2\text{O}$	$r_8 = k_8 \cdot c_{\text{H}_2} \cdot c_{\text{O}_2}$	$9,87 \cdot 10^8$	31
	$\text{CO} + \text{O}_2 \rightarrow \text{CO}_2$	$r_9 = k_9 \cdot c_{\text{CO}} \cdot c_{\text{O}_2}^{0,25}$	$2,39 \cdot 10^{12}$	170

Katalytische Verbrennung

Die Fluent Modellbibliothek liefert Zusammenhänge für die TOX-Reaktion von Kerosin sowie für die Oxidationsreaktionen von H_2 , CO und CH_4 . Die in Tabelle 6.4 dargestellten Reaktionsmechanismen der Oxidationsreaktionen ermöglichen die Modellierung des Verhaltens im CAB. Die Modellparameter basieren auf der Annahme einer volumetrischen Reaktion nach Gleichung (3.24) und müssen zur Modellierung der Oberflächenreaktionen im Monolithen mit der aktiven Oberfläche angepasst werden.

Abbildung 6.3 zeigt den modellierten Reaktionsverlauf im CAB für eine Luftzahl von $\lambda = 1$. Dargestellt sind das Temperaturprofil und die über die Eduktzusammensetzung normierten Konzentrationsverläufe von H_2 , CO und CH_4 . In der zugrunde liegenden CFD-Modellierung wurde ausschließlich der Monolith mit adiabater Randbedingung betrachtet. In den Experimenten konnte, bei unvollständigem Umsatz für $\lambda = 0,95$, kein Methan jedoch geringe Mengen Kohlenmonoxid und Wasserstoff im Produktgas nachgewiesen werden [139]. Als Reaktion des Methans wird in der Modellierung daher lediglich die partielle Oxidation zu Kohlenmonoxid und Wasser berücksichtigt. Die Edukteintrittstemperatur hat eine starke Auswirkung auf den beobachteten Reaktionsverlauf. Das eintretende Gasgemisch wird im Monolithvorlauf durch Wärmeströme aus dem Monolithen und aus dem inneren Ringspalt des heißen Abgases aufgewärmt. Dieser Effekt wird durch das vor dem Monolithen positionierte Drahtgestrick weiter verstärkt. In einem CFD-Gesamtmodell des CAB wurde gezeigt, dass die beiden Wärmeströme in der gleichen Größenordnung liegen. In der Reaktionsmodellierung wird hierzu angenommen, dass 50 % der dem Eduktgas zugeführten Wärme aus dem heißen CAB-Abgas stammen und somit als externe Quelle berücksichtigt werden müssen. Als Monolitheintrittstemperatur wird somit der Mittelwert aus der in Abbildung 6.2 dargestellten Temperatur im Monolithvorlauf und der Edukttemperatur gewählt. Die adiabat modellierte Monolithaustrittstemperatur liegt mit 833 °C um 15 K über dem experimentell bestimmten Wert. Die Temperaturdifferenz resultiert dabei aus der Annahme eines adiabaten Monolithen. Die gestrichelt dargestellten Verläufe der normierten Massenströme zeigen einen vollständigen Umsatz von H_2 bei etwa 25 mm und einen vollständigen Umsatz von CO nach 50 mm. Die Simulation auf Basis der Parameter nach Tabelle 6.4 führte zu einem unvollständigen Umsatz des CH_4 im Monolithen.

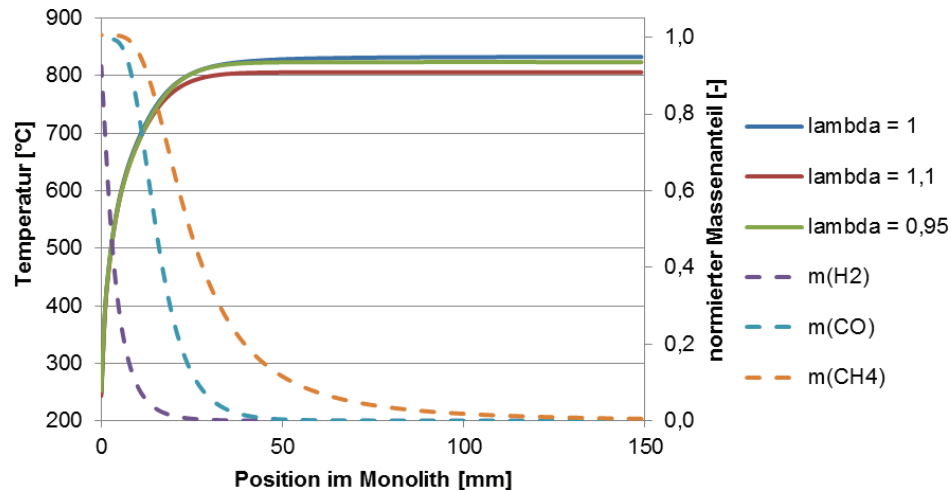


Abb. 6.3: Modellierter Verlauf der Abgastemperatur und der Abgaszusammensetzung im katalytischen Brenner

Daher wurde der präexponentielle Faktor der partiellen Oxidation von Methan um den Faktor 20 erhöht. Abbildung 6.3 zeigt den mit den modifizierten Parametern modellierten Verlauf des CH_4 -Massenstroms. Bis zur Mitte des Monolithen werden 96 % des Methans umgesetzt. Dies entspricht einer Temperaturdifferenz zwischen Monolithmitte und Monolithaustritt um wenige Grad K. Zusätzlich sind in Abbildung 6.3 die Temperaturverläufe für $\lambda = 0,95$ und $\lambda = 1,1$ dargestellt. Beide Verläufe zeigen das in den Experimenten beobachtete geringere Temperaturniveau. Die modellierten Austrittstemperaturen liegen dabei bis zu 2,3 % über den gemessenen Werten, die Temperaturen in der Monolithmitte um bis zu 4 %. Die angepasste Modellierung der katalytischen Verbrennung zeigt eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Werten. Ungenauigkeiten in der Modellierung entstehen aus der Bestimmung der Monolith Eintrittstemperatur und der angenommenen adiabaten Randbedingungen. Diese Fehler entfallen bei einer Modellierung in einem Gesamtmodell des katalytischen Brenners. Die erforderliche Modifizierung der Kinetik der partiellen Oxidation von Methan ist ein Indiz dafür, dass die Oxidationsreaktionen von Wasserstoff und Kohlenmonoxid ebenfalls schneller ablaufen. Da die genauen Reaktionsmechanismen und die Wechselwirkungen zwischen dem Katalysator und den Reaktanden nicht bekannt sind, werden die Modellparameter der H_2 - und der CO -Oxidation nicht weiter angepasst. Eine Modifizierung der Modelle erfordert eine umfassende experimentelle Untersuchung der katalytischen Verbrennung. Die hierzu benötigten Untersuchungen des Temperaturprofils und der Änderungen der Gemischzusammensetzung über den Verlauf des Monolithen liegen außerhalb der Ziele der vorliegenden Arbeit. Das in Abbildung 6.3 dargestellte Reaktionsverhalten zeigt eine ausreichende Genauigkeit des modifizierten Reaktionsmodells zur Auslegung der integrierten Wärmeübertrager im katalytischen Brenner.

Tabelle 6.5: Herleitung der Modellparameter der vereinfachten Reaktionsmodellierung im ATR

	Versuchsparameter			Modellbildung			Modellvalidierung			
	\dot{m}_{Kerosin} g/h	$n_{\text{O}_2}/n_{\text{C}}$ [-]	$n_{\text{H}_2\text{O}}/n_{\text{C}}$ [-]	T_{MK} [°C]	ΔE [kJ/kg]	C_{TOX} [%]	T_{max}	ΔT_{max} [%]	$T_{140\text{mm}}$ [°C]	$\Delta T_{140\text{mm}}$ [%]
10	2700	0,43	1,7	202	281	18	834	0,0	617	5,6
7	2700	0,43	1,9	213	269	18	818	0,4	616	6,1
Ø						18				
2	2700	0,47	1,7	201	279	20	886	0,6	695	0,4
8	2700	0,47	1,9	211	267	22	884	0,1	690	0,0
Ø						21 ± 1				

Wassergas-Shiftreaktion

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Ansatz zur CFD-Modellierung von Gleichgewichtsreaktionen am Fallbeispiel der Wassergas-Shiftreaktionen hergeleitet und in einer *User-Defined-Function* implementiert. Der Modellierungsansatz ist in Anhang C.2 dargestellt. Die Modellierung erfordert eine Anpassung der Modellparameter auf Basis einer statistischen experimentellen Untersuchung des Reaktionsverhaltens der WGS-Reaktoren. Im Rahmen dieser Arbeit werden die Wassergas-Shiftreaktionen nicht weiter betrachtet.

6.2.3 Herleitung einer Ähnlichkeitstheoretischen Modellierungsmethode der autothermen Reformierung

Die genaue Modellierung mittels angepasster Modelle erfordert einen hohen experimentellen Aufwand. Der Fokus bei der Modellierung der chemischen Reaktionen liegt in dieser Arbeit auf der Bestimmung der Randbedingungen der integrierten Wärmeübertrager. Wichtig ist die genaue Abbildung der thermischen Einflüsse aus den Reaktionen. Somit wird auf einen vereinfachten Modellierungsansatz zur Beschreibung der autothermen Reformierung zurückgegriffen. Hierbei wird der Verlauf der chemischen Reaktionen getrennt von der CFD-Simulation berechnet. Die Einbindung der Chemie in das CFD-Modell erfolgt über Quell- und Senkterme der Energie und der Komponentenmassenströme in den Navier-Stokes Gleichungen. Durch die Einbindung der Quellen und Senken in Gleichung (3.8) und Gleichung (3.9) werden im Modell keine weiteren Gleichungen zur Berücksichtigung der Chemie gelöst. Hierdurch verringert sich der Rechenaufwand der Simulation. Die direkte Modellierung der Chemie erfordert hingegen zusätzliche Modellgleichungen und verschlechtert das Konvergenzverhalten der Simulation. Schnell ablaufende Reaktionen, wie die POX und TOX Reaktionen im ATR, erfordern gegebenenfalls eine feinere Vernetzung am Monolitheintritt und die Berechnung der Reaktionskinetiken mittels steifer Differentialgleichungen.

Das Ähnlichkeitstheoretische Modell basiert auf der Annahme, dass die Reaktionen in voneinander getrennten Stufen ablaufen. Diese Stufen werden anhand von charakteristischen Punkten

in Tabelle 6.1 unterschieden. Aufgrund der achsennahen Lage der Thermoelemente im Monolithen wird das gemessene Temperaturprofil als annähernd adiabat angenommen. Der Einfluss der thermischen Verlust wird somit vernachlässigt.

In der ersten Stufe laufen ausschließlich die POX- und TOX-Reaktionen bis zum vollständigen Umsatz des Sauerstoffs ab. Das auf den Kohlenstoffumsatz bezogene POX zu TOX Verhältnis wird hierbei so angepasst, dass die experimentell ermittelten Maximaltemperaturen erreicht werden. Tabelle 6.5 zeigt für den betrachteten Beispielfall des ATR 9.2 ein POX/TOX Verhältnis von 18 bei einem n_{O_2}/n_C -Verhältnis von 0,43 und ein POX/TOX-Verhältnis von 21 ± 1 bei einem n_{O_2}/n_C -Verhältnis von 0,47. Im Modell wird davon ausgegangen, dass keine exothermen Vorreaktionen auftreten. Die Temperaturerhöhung im Vorlauf des Monolithen ist somit ausschließlich auf interne Wärmeströme im Reaktor zurückzuführen. Hierbei wird die Wärmeübertragung durch Konvektion und Konduktion aus dem heißen Monolithen als dominant angenommen. Weitere interne Wärmeströme werden vernachlässigt. Bei der Berechnung der Temperaturerhöhung durch die POX und TOX-Reaktionen wird somit von der adiabaten Gemischtemperatur als Starttemperatur ausgegangen. In der weiteren Modellierung wird das Verhältnis der Reaktionsgeschwindigkeiten von POX und TOX im relevanten Temperaturbereich als konstant angenommen. Änderungen der Gemischtemperatur führen somit zu einer Verschiebung des Temperaturniveaus der Reaktionen bei sonst parallelem Verlauf. Änderungen infolge der Eduktzusammensetzung werden nach Tabelle 6.5 über eine Anpassung des POX zu TOX Verhältnisses berücksichtigt. Die Länge der ersten Reaktionszone wird durch die experimentell ermittelte Verweilzeit von $\tau_{T=\max} = 2,1$ ms bestimmt und im Modell durch eine separate Monolithzone berücksichtigt. In dieser Zone werden die mit den Modellannahmen berechneten Quell- und Senkterme für die Energie und die Komponentenmassenströme implementiert. In den folgenden zwei Reaktionszonen laufen die SR-Reaktion bis zum vollständigen Kerosinumsatz und die WGS Reaktion bis zum Erreichen des GGW-Zustands ab. Das Gleichgewicht der WGS-Reaktion wird über die Änderung der freien Gibbsschen Enthalpie $\Delta \bar{G}$ bestimmt [151]. Im chemischen Gleichgewicht gilt $\Delta \bar{G} = 0$. Die freie Gibbssche Energie ist eine Funktion der Enthalpie \bar{H} , der Entropie \bar{S} und der Temperatur. Die temperaturabhängigen Werte der Enthalpie und der Entropie wurden mittels polynomischer Zusammenhänge aus [152] berechnet:

$$\bar{G}(T) = \bar{H}(T) - T \cdot \bar{S}(T) \quad (6.1)$$

Die Gleichgewichtskonstante K_{eq} lässt sich sowohl aus der freien Gibbsschen Enthalpie als auch aus den Partialdrücken der Reaktanden im Gleichgewicht herleiten. Aus der Gleichsetzung der Beziehungen in Gleichung (6.2) wird das Reaktionsgleichgewicht berechnet:

$$K_{eq} = \exp\left(\frac{\bar{G}_{WGS}(T)}{RT}\right) = \frac{p_{H_2} \cdot p_{CO_2}}{p_{H_2O} \cdot p_{CO}} \stackrel{N = \text{konst.}}{=} \frac{x_{H_2} \cdot x_{CO_2}}{x_{H_2O} \cdot x_{CO}} \quad (6.2)$$

Hierbei wird die Gleichgewichtskonstante über die Stoffmengenanteile x_i und über die Änderung der Stoffmengenanteile Δ formuliert.

$$K_{eq} = \frac{(x_{H_2,in} + \Delta) \cdot (x_{CO_2,in} + \Delta)}{(x_{H_2O,in} + \Delta) \cdot (x_{CO,in} + \Delta)} \quad (6.3)$$

Tabelle 6.6: Modellvalidierung der vereinfachten Reaktionsmodellierung im ATR

	$n_{O_2}/n_C = 0,43$			$n_{O_2}/n_C = 0,47$		
	$\bar{\varnothing}_{Exp}$ [mol-%]	$\bar{\varnothing}_{Modell}$ [mol-%]	$\bar{\varnothing}_{Fehler}$ [%]	$\bar{\varnothing}_{Exp}$ [mol-%]	$\bar{\varnothing}_{Modell}$ [mol-%]	$\bar{\varnothing}_{Fehler}$ [%]
N_2	37,3	36,2	3,1	39,6	39,5	0,1
CO_2	13	13,3	1,8	12,3	12,2	0,4
CO	8,5	9,3	9,0	9,2	9,7	11,7
H_2	39,1	41,3	5,6	37,8	37,9	0,5
$cp_{m,trocken}$	32,28	32,90	1,9	32,02	33,16	3,56

Wie Tabelle 6.1 zeigt, sinkt die Gemischtemperatur zwischen der 5 mm und der 10 mm Position infolge der SR-Reaktionen um mehr als 200 K. Bei 60 % und bei 80 % Last liegt die Änderung der Gemischtemperatur zwischen der 10 mm Position und dem Monolithaustritt unter 1 %. Unter der Annahme, dass sich bei 80 % Last die Minimaltemperatur genau an der 10 mm Position einstellt, ergibt sich eine Verweilzeit von $\tau_{T=min} = 5,25$ ms bis zum Erreichen der minimalen Temperatur. Bei 60 % Last liegt die Temperaturdifferenz zwischen den Messpunkten bei 75 mm und 140 mm unter 0,5 %. Somit wird angenommen, dass an diesem Punkt die Reaktionen nahezu vollständig abgelaufen sind und das chemische Gleichgewicht der WGS-Reaktion erreicht wurde. Hieraus ergibt sich eine Verweilzeit von $\tau_{GGW} = 52,5$ ms bis zum Gleichgewichtszustand.

Durch die Anpassung dieses Modells über die Ähnlichkeitstheoretischen Verweilzeiten werden die charakteristischen Punkte des Reaktionsverlaufs genau abgebildet. Tabelle 6.5 zeigt eine Fehlerrechnung der vereinfachten Modellierung. Die Modellierung der Maximaltemperatur zeigt eine Abweichung zum Experiment von unter 1 %. Am Monolithaustritt liegt die maximale Abweichung bei 6,1 %. Der Verlauf der Konzentration kann nur am Monolithaustritt experimentell validiert werden. Die ermittelten Fehler liegen hier nach Tabelle 6.6 bei maximal 3,1 % für N_2 , maximal 1,8 % für CO_2 , maximal 11,7 % für CO und maximal 5,6 % für H_2 . Bezogen auf die für die Wärmeübertragung bestimmende spezifische Wärmekapazität des Gemischs, entspricht dies einer Abweichung von maximal 3,56 %. Die spezifische Wärmekapazität im Experiment wurde hierbei aus der gemessenen Gemischzusammensetzung berechnet. Im untersuchten Betriebsbereich zeigt das vereinfachte Modell eine höhere Genauigkeit als die direkte Modellierung nach [147]. Generell erfordert dieser Ansatz jedoch eine experimentelle Validierung und Modifizierung bei Abweichungen der Reaktorgeometrie oder des Betriebsbereichs in Bezug auf die Ähnlichkeit. Die Reaktionsraten zwischen den charakteristischen Punkten werden durch die Modellierung über Quellterme als konstant angenommen. Hierdurch ergibt sich eine weitere Fehlerquelle. Bezogen auf das Temperaturprofil wird diese Ungenauigkeit durch die Wärmeleitung im Monolithen sowie die Temperaturabhängigkeit der Stoffeigenschaften abgemildert. Die getrennte Berechnung der chemischen Reaktionen erlaubt keine Berücksichtigung der gegenseitigen Wechselwirkungen im System. Das simulierte Temperaturprofil und die Konzentrationsänderungen werden eingebunden, der Einfluss der Umgebung auf diese Reaktionen

jedoch nicht. Fehler entstehen hierbei vor allem bei Änderungen der Eingangsparameter, insbesondere der Gemischeingangstemperatur. Unter Annahme eines konstanten Verhältnisses der gemittelten Reaktionsgeschwindigkeitskonstanten im relevanten Temperaturbereich, ist diese Vernachlässigung jedoch zulässig. Eine weitere Ungenauigkeit ergibt sich in diesem Fall vor allem durch eine Verschiebung des Shiftgleichgewichts bei Änderungen des Temperaturniveaus der Reaktionen.

Das vorgestellte Ähnlichkeitstheoretische Modell wurde zusätzlich, analog zur vorgestellten Herleitung, unter Berücksichtigung der Methanisierungsreaktion hergeleitet. Die angenommenen Methankonzentrationen im Produktgas wurden dabei den experimentellen Werten angepasst. Ein Vergleich der beiden Modelle zeigte keine signifikante Abhängigkeit der Modellgenauigkeit von der Berücksichtigung der Methanisierung.

Das hergeleitete Ähnlichkeitstheoretische Modell der autothermen Reformierung basiert auf experimentell ermittelten charakteristischen Punkten im Temperaturverlauf. Hierbei wurde davon ausgegangen, dass die im Experiment gemessenen Temperaturen einen charakteristischen Kurvenverlauf wiedergeben. Wie diskutiert, führt die geringe Anzahl der Thermoelemente und die fehlerbehaftete Positionierung der Messpunkte, zu einer hohen Ungenauigkeit der gemessenen Temperaturprofile. Eine weitere Ungenauigkeit ergibt sich aus der Annahme eines adiabaten Reaktionsverlauf im Monolithkern. Daher wurde in den weiterführenden CFD-Modellierungen teilweise auf ein vereinfachtes Modell mit lediglich zwei charakteristischen Reaktionszonen zurückgegriffen.

6.3 Modellierung der exothermen Vorreaktionen

Neben den thematisierten Hauptreaktionen beeinflussen die exothermen Vorreaktionen entscheidend die Funktionsfähigkeit der autothermen Reformer. Eine kontrolliert ablaufende Vorreaktion erhöht das Temperaturniveau in der Mischkammer und verbessert somit die Kraftstoffverdampfung. Das Auftreten von stark instationären Reaktionseffekten verringert jedoch den möglichen Betriebsbereich der Reaktoren. Im folgenden Abschnitt wird ein einfaches CFD-Modell zur Berücksichtigung der exothermen Vorreaktionen hergeleitet. Somit wird ein Werkzeug zur Untersuchung der stationären und instationären Effekte bei zukünftigen Mischkammerkonstruktionen bereitgestellt. Ziel ist es ein einfaches Modell auf Basis einer einzelnen zusätzlichen Modellreaktion zu entwickeln.

6.3.1 Verweilzeitanalyse

Das Auftreten von exothermen Vorreaktionen wird, wie Tabelle 6.1 zeigt, durch die Edukteigenschaften sowie die thermischen Randbedingungen der Mischkammer beeinflusst. Neben diesen Randbedingungen ist das Verweilzeitverhalten der Edukte in der Mischkammer entscheidend für die Intensität der Reaktionen. Abbildung 6.4 zeigt den Verlauf der Verweilzeitverteilung von Kerosin, Luft und Wasserdampf im Auslegungspunkt des ATR 9.2 nach Tabelle 4.4. Das Verweilzeitverhalten des Reaktors wurde dabei analog zu Kapitel 5 bestimmt. Die Genauigkeit der instationären Strömungsmodellierung wurde ebenda experimentell validiert. Der zeitliche Ver-

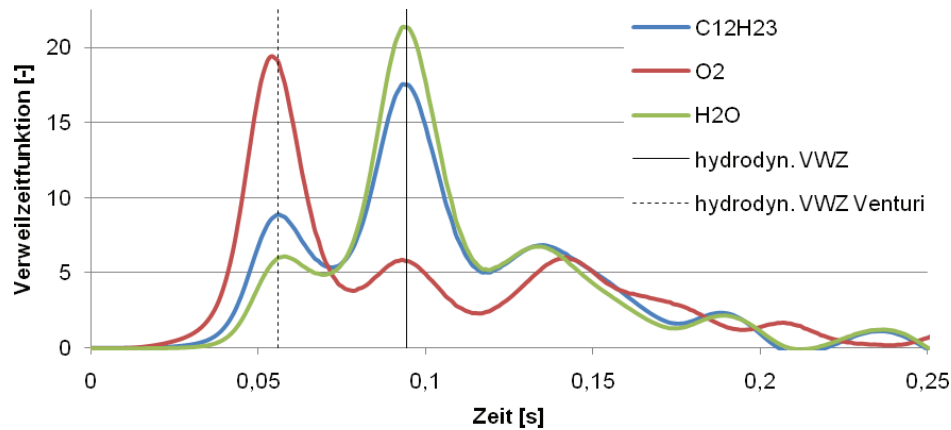


Abb. 6.4: Verweilzeitverteilung der Edukte in der Mischkammer des ATR 9.2 im Auslegungspunkt

satz der Kurven um etwa 0,025 s deutet auf ein Strömungsverhalten, entsprechend einem idealen Strömungsrohr, im Vorlauf des Monolithen hin. Der Hauptpeak für Luft bei 0,056 s deckt sich mit der hydrodynamischen Verweilzeit der Strömung zwischen dem engsten Querschnitt des Venturirohrs und dem Monolithen. Eine Analyse der Fläche unter dem Kurvenverlauf zeigt, dass etwa 44 % der eintretenden Luft direkt in den hinteren Mischkammerbereich strömen. Die Verweilzeitverteilungen des Kerosins und der Luft zeigen für diese Verweilzeit erste ausgeprägte Peaks. Diese repräsentieren den Anteil der Strömung der direkt durch den vorderen Bereich der Mischkammer strömt. Aufgrund der geringen Verdampfungsdauer der Kerosintropfen verlaufen die Kurven von Kerosin und Dampf annähernd deckungsgleich. Im Vergleich der beiden Verläufe ist der erste Peak bei Kerosin infolge der hohen Strömungsgeschwindigkeit der Tropfeneinspritzung stärker ausgeprägt. Die Hauptpeaks von Kerosin und Dampf liegen bei etwa 0,094 s, in der Größenordnung der hydrodynamischen Verweilzeit des Gesamtreaktors. Hinter ihrem Hauptpeak fallen die drei Kurven in einem alternierenden Verlauf ab. Der Verlauf der Verweilzeitverteilung der Luft ist dabei leicht verschoben. Das alternierende Verhalten resultiert aus den rotierenden Hauptströmungen im vorderen Bereich der Mischkammer. Das beobachtete Verweilzeitverhalten deckt sich mit den Untersuchungen der autothermen Reformier in Kapitel 5. Die Verweilzeitverteilungen bei 50 % Last sind im Anhang C.3 dargestellt.

Analog zu Kapitel 5 wurde der numerische Fehler der Verweilzeitberechnung anhand der Summenkurve der jeweiligen Komponenten und Tracer durchgeführt. Die Verläufe der normierten Summenkurven sind in Anhang C.4 dargestellt. Der maximale numerische Fehler liegt in der Größenordnung von 10 % bis 12,5 %. Die Abweichung resultiert aus den starken Konzentrationsgradienten der Komponenten beim Umschalten der Eduktzuführung auf die Tracersubstanzen. Mit erhöhtem Rechenaufwand lässt sich dieser Fehler durch eine feinere Vernetzung, einen geringeren Zeitschritt und durch die Erhöhung der Anzahl der Iterationsschritte pro Zeitschritt vermindern.

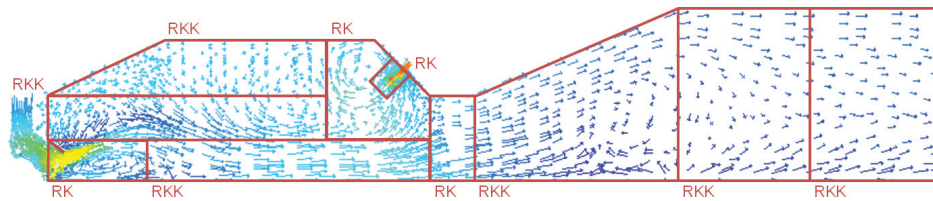


Abb. 6.5: Aufteilung der Mischkammer des ATR 9.2 in ideale Reaktoren [153]

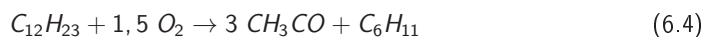
6.3.2 Herleitung eines Matlab/Simulink Modells

Auf Basis der durchgeführten Strömungssimulationen wurde die Mischkammer des ATR 9.2 in ein System idealer Reaktoren überführt [153]. Die Verschaltung und das Volumen der idealen Rührkesselreaktoren wurde dabei so gewählt, dass das Verweilzeitverhalten der Verschaltung dem simulierten Verweilzeitverhalten des Reaktors entspricht. Einzelne ideale Rührkessel und Rührkesselkaskaden entsprechen dabei charakteristischen Strömungen in der ATR Mischkammer. Die hergeleitete Verschaltung bildet somit eine grobe räumliche Diskretisierung des Reaktionsgebiets. Das Modell wurde in Matlab/Simulink übertragen. In den idealen Reaktoren wird sowohl die Strömung als auch die Chemie berechnet. Das so aufgestellte Modell erlaubt die Untersuchung von komplexen instationären Reaktionssystemen mit einer hohen zeitlichen Diskretisierung. Eine entsprechende CFD-Modellierung lässt sich nur mit einem extrem hohen Rechenaufwand durchführen und ist somit nicht in eine Gesamtmodellierung zu integrieren. Ziel der Matlab/Simulink Untersuchungen ist die Bewertung von Kinetikansätzen der Reaktionsraten aus der Literatur, sowie die Herleitung eines vereinfachten Reaktionsmodells zur Übertragung der exothermen Vorreaktionen in die CFD-Simulationen.

Abbildung 6.5 zeigt die Aufteilung der Reformermischkammer in ideale Reaktoren. Das entsprechende Matlab/Simulink Modell findet sich in Anhang C.5 [153]. Charakteristische Strömungsstrukturen werden dabei über einzelne Rührkessel oder Rührkesselkaskaden abgebildet. Mit steigender Anzahl an idealen Rührkesseln in einer Rührkesselkaskade nähert sich das modellierte Verweilzeitverhalten dabei der gerichteten Strömung in einem idealen Strömungsrohr an. Die eintretenden Strömungen werden über ideale Rührkessel auf die sich anschließenden Reaktoren verteilt. Die in der Verweilzeitverteilung erkennbaren rotierenden Strömungen in der Mischkammer sind durch zwei entgegengesetzt laufende Rührkesselkaskaden abgebildet. Der direkte Transport von Kerosin und Dampf durch die vordere Mischkammer wird durch eine einzelne zentrale Rührkesselkaskade realisiert. Das Strömungsverhalten in der hinteren Mischkammer, analog zu einem idealen Strömungsrohr, ist durch drei in Reihe geschaltete Rührkesselkaskaden abgebildet. Aus der Aufteilung ergeben sich die in Abbildung 6.6 dargestellten Verweilzeitsummenkurven. Das Matlab/Simulink Modell stimmt im Rahmen der Modellgenauigkeit von etwa 10 % mit dem Ergebnis der CFD-Simulation überein. Eine Anpassung der Kurven über diese Genauigkeit hinaus ist nicht sinnvoll. Das pulsierende Verhalten der Strömung wird nicht genau aufgelöst. Neben den Hauptpeaks zeigt das Verweilzeitverhalten einen geglätteten Verlauf. Das Modell der idealen Reaktoren hat somit eine geringere lokale Auflösung. Gerade bei instationären Effekten können lokale Extremwerte zu einer Zündung

des Gasgemischs führen, welche sich im Reaktor ausbreitet. Das Matlab/Simulink Modell ist somit geeignet das prinzipielle Verhalten der exothermen Vorreaktionen zu untersuchen und komplexe Reaktionssysteme zu validieren und zu modifizieren. Zündungseffekte durch lokale Inhomogenitäten und Extremwerte sind nur bedingt vorhersagbar. Anhand des vorgestellten Modells wurden in [153] unterschiedliche Ansätze zur Reaktionskinetik untersucht. Dabei wurden Modelle auf Basis einer Wärmeexplosion und einer Kettenexplosion berücksichtigt. Beide Modellarten ermöglichen jedoch keine Modellierung des in Abbildung 2.2 gezeigten negativen Temperaturkoeffizienten. Eine Verbindung der Modelle der Wärme- und der Kettenexplosion bietet das Modell von Gray und Yang [154]. Analog zum Modell der Kettenexplosion werden Start-, Verzweigungs- und Abbruchreaktionen berücksichtigt. Durch die Anpassung der Aktivierungsenergien der einzelnen Reaktionen ist die Modellierung des NTC möglich. Somit bietet sich das Modell von Gray und Yang für weiterführende Untersuchungen der exothermen Vorreaktionen an. Hierbei wären vor allem komplexe Reaktionssysteme zur Herleitung eines Kennfelds der exothermen Vorreaktionen von Interesse. Weitere interessante Fragestellungen wären der Einfluss der Wärmeleitung über die Mischkammerwand, sowie der katalytische Einfluss von Additiven im Stahl. Im Matlab/Simulink Modell können diese Einflüsse durch die Einführung von zusätzlichen Wärmeströmen und das Absenken der Aktivierungsenergie in den wandnahen idealen Reaktoren berücksichtigt werden.

Als Werkzeug der CFD-Modellierung wurde ein vereinfachter Reaktionsmechanismus auf Basis einer einzelnen Reaktion (1-Reaktionsmodell) hergeleitet. Analog zu [16] basiert die Modellierung auf der Reaktion von Kerosin zu Acetaldehyd und einem kurzkettigen Kohlenwasserstoffgemisch:



Das 1-Reaktionsmodell wurde an den qualitativen Verlauf der Produkttemperatur der exothermen Vorreaktionen von Heizöl nach [26] angepasst. Als Parameter der Arrhenius-Gleichung wurden ein präexponentieller Faktor von $A_i = 1 \cdot 10^7$ und eine Aktivierungsenergie von $E_A = 100$ kJ/mol ermittelt. Diese Werte sind dabei reine Modellparameter und bilden keine reale Reaktion ab. Wie der blau gestrichelte Verlauf in Abbildung 6.7 zeigt, folgt der simulierte Reaktionsverlauf der sprunghaften Temperaturerhöhung bei etwa 300 °C. Der Einfluss des negativen Temperaturkoeffizienten wird jedoch nicht berücksichtigt. Die empirische Reaktionskinetik erlaubt im CFD-Modell eine qualitative Vorhersage über den Ort und die Intensität einer exothermen Vorreaktion.

6.3.3 CFD-Implementierung der angepassten Reaktionskinetiken

Anhand der experimentellen Ergebnisse aus Tabelle 6.1 und Abbildung 6.1 und Daten aus der Literatur wurde ein vereinfachtes 1-Reaktionsmodell der exothermen Vorreaktionen hergeleitet. Um den Einfluss der Vorreaktionen in der CFD-Reaktormodellierung zu berücksichtigen, wurde die Kinetik nach Gleichung (3.24) in das CFD-Modell übertragen. Die Reaktion wird dabei als volumetrische Reaktion eingebunden. Zur Berücksichtigung des NTC wurde das Modell hierbei um einen temperaturabhängigen Schalter erweitert. Über eine UDF wird in der Modellierung die Reaktionsrate der exothermen Vorreaktion bei Gemischtemperaturen oberhalb von

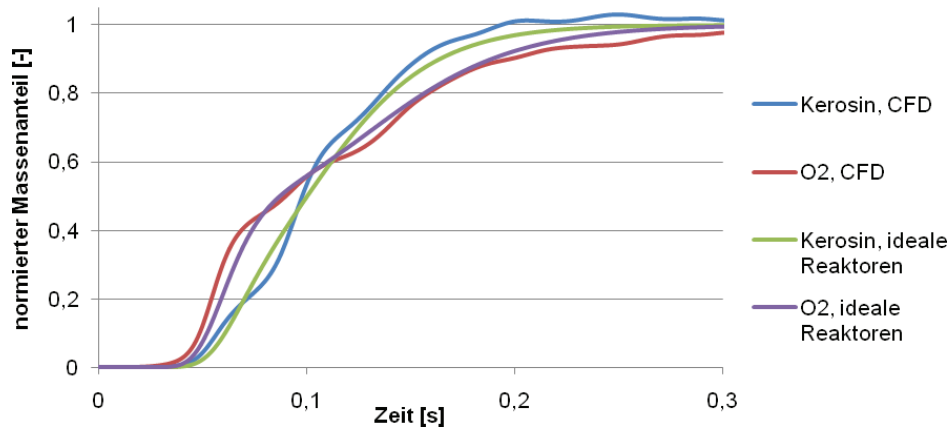


Abb. 6.6: Validierung der Matlab/Simulink-Modellierung des Verweilzeitverhaltens [153]

Tabelle 6.7: Reaktionsmodell der exothermen Vorreaktion mit Selbstzündung [125]

	Reaktion	Reaktionsrate	A_i	E_A	β
		$\left[\frac{\text{kmol}}{\text{m}^2 \cdot \text{s}} \right]$		$\left[\frac{\text{kJ}}{\text{mol}} \right]$	$[-]$
M/S	$\text{C}_{12}\text{H}_{23} + 1,5 \text{ O}_2 \rightarrow 3 \text{ CH}_3\text{CO} + \text{C}_6\text{H}_{11}$	$r_{10} = k_{10} \cdot c_{\text{C}_{12}\text{H}_{23}} \cdot c_{\text{O}_2}$	$1 \cdot 10^7$	100	1,6
TOX	$\text{C}_{12}\text{H}_{23} + 17,75 \text{ O}_2 \rightarrow 12 \text{ CO}_2 + 11,5 \text{ H}_2\text{O}$	$r_5 = k_5 \cdot c_{\text{C}_{12}\text{H}_{23}}^{0,25} \cdot c_{\text{O}_2}^{1,5}$	$2,587 \cdot 10^9$	125,6	
	$\text{CH}_3\text{HCO} + 2,5 \text{ O}_2 \rightarrow 2 \text{ CO}_2 + 2 \text{ H}_2\text{O}$	$r_{11} = k_{11} \cdot c_{\text{CH}_3\text{HCO}}^{0,25} \cdot c_{\text{O}_2}^{1,5}$	$3,655 \cdot 10^{10}$	125,6	
	$\text{C}_6\text{H}_{11} + 8,75 \text{ O}_2 \rightarrow 6 \text{ CO}_2 + 5,5 \text{ H}_2\text{O}$	$r_{12} = k_{12} \cdot c_{\text{C}_6\text{H}_{11}}^{0,25} \cdot c_{\text{O}_2}^{1,5}$	$3,205 \cdot 10^9$	125,6	

480 °C gleich Null gesetzt. Der Verlauf der Kurven in Abbildung 6.1 zeigt Produkttemperaturen der exothermen Vorreaktionen oberhalb von 490 °C. Diese Temperaturen sind auf die Selbstzündung des Gemischs zurückzuführen. In der CFD-Modellierung wurden daher als Modellerweiterung die Totaloxidation des Kerosins und der Produkte der exothermen Vorreaktion als zusätzliche Reaktionen berücksichtigt. Tabelle 6.7 fasst die Parameter der Reaktionsmodelle der exothermen Vorreaktionen zusammen.

Abbildung 6.7 zeigt den Verlauf der Produkttemperatur der exothermen Vorreaktionen als Funktion der Edukttemperatur. Hierbei sind die Verläufe des 1-Reaktionsmodells, des erweiterten Reaktionsmodells und des erweiterten Reaktionsmodells mit Selbstzündung der Kohlenwasserstoffe berücksichtigt. Der Verlauf des erweiterten Modells folgt dem ebenfalls dargestellten qualitativen Verlauf der kalten Flamme für Heizöl. Unter Berücksichtigung der TOX-Reaktionen kommt es zu einer Selbstzündung des Gemischs im Temperaturbereich von 490 °C. Dies entspricht den experimentellen Ergebnissen. Das erweiterte Modell mit Selbstzündung bildet somit den charakteristischen Verlauf der exothermen Vorreaktionen des Gasgemischs ab.

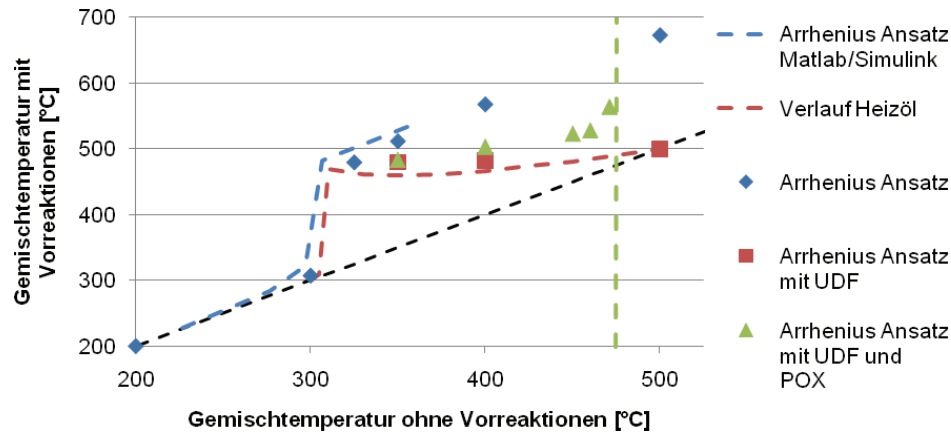


Abb. 6.7: Validierung der Modellreaktionen der exothermen Vorreaktionen anhand der Produkttemperatur und des qualitativen Verlaufs für Heizöl [26]

Abbildung 6.8 zeigt die Ergebnisse der Modellierung der exothermen Vorreaktionen in der Mischkammer des ATR 9.2. Die untersuchten Betriebsparameter bilden den in Tabelle 6.1 hervorgehobenen Fall 3 ab. Dargestellt sind das Temperaturprofil ohne Vorreaktionen, das Temperaturprofil im erweiterten Modell mit Selbstzündung und das Temperaturprofil des 1-Reaktionsmodells mit Selbstzündung. Die Positionen der Thermoelemente T_{MK} und T_{-5mm} im Prototypentest des ATR 9.2 sind im oberen Temperaturprofil markiert. Im vorderen Bereich der Mischkammer liegen die simulierten Temperaturen um 20 K bis 70 K über den experimentell bestimmten Werten. Die Abweichungen resultieren aus der Lage des Thermoelements sowie aus Abweichungen in der berechneten Verteilung der kalten Luft. Im dargestellten 2D-Modell werden hier Inhomogenitäten über den Umfang des Reaktors vernachlässigt. Die berechneten Temperaturprofile im vorderen Bereich der Mischkammer zeigen keine signifikanten Abweichungen voneinander. In diesem Bereich treten somit keine ausgeprägten Vorreaktionen auf. Der Einfluss einer keramischen Mischkammer im Bereich der Kraftstoffverdampfung ist somit für die Vorreaktionen vernachlässigbar. Ein intensives Auftreten der exothermen Vorreaktion ist ausschließlich im Vorlauf des Monolithen zu beobachten. Hier wird das Eduktgemisch durch die Wärmeübertragung aus dem heißen Reformat und dem heißen Monolithen lokal stark aufgeheizt. Dieser in Abbildung 6.8 blau umrandete Bereich wird in Abbildung 6.9 genauer dargestellt. Die lokalen Wärmequellen im Gasgemisch führen zum Auftreten von ausgeprägten exothermen Vorreaktionen. Im direkten Vorlauf des Monolithen kann es zu einer Selbstzündung des Gemischs kommen. Für die Modellierung des erweiterten Modells mit Selbstzündung ist der Verlauf der Reaktionsrate der exothermen Vorreaktion dargestellt. Im vorderen Bereich der Mischkammer treten insbesondere an der Wand zur heißen Dampfkammer geringe Reaktionsraten auf. Im Vorlauf des Monolithen liegen die Reaktionsraten um bis zu einem Faktor von 100 höher. Der Hauptreaktionsbereich bildet dabei ein schmales Band aus. Die dargestellte Reaktion bricht aufgrund der Gemischtemperatur von über 500 °C sowie aufgrund lokalen

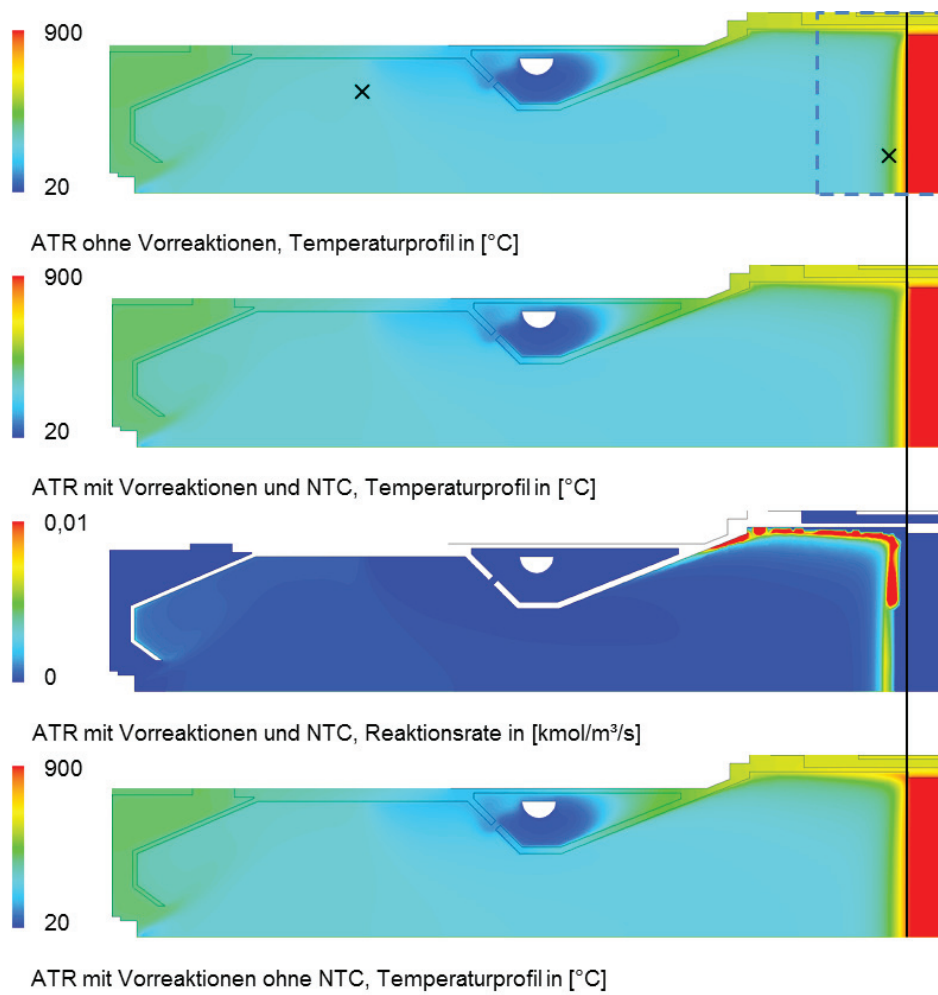
Eduktverarmungen ab. In den wandnahen Strömungsbereichen und direkt am Monolitheintritt kommt es infolge der TOX Reaktionen zur Selbstzündung des Modells.

Das dargestellte Reaktionsergebnis zeigt den qualitativen Verlauf der Reaktionen. Die Vorreaktionen laufen dabei nur in einem schmalen Reaktionsband im Monolithvorlauf ab. Eine steigende Last führt hierbei durch die höhere Strömungsgeschwindigkeit zu einem schmaleren Reaktionsband. Die betriebsbedingt variierende Lage des schmalen Reaktionsbereichs führt zu einer starken Abhängigkeit der gemessenen Maximaltemperatur von der Position des Thermoelements. So ist beispielsweise in Betriebspunkt 9 in Tabelle 6.1 eine wesentlich höhere Maximaltemperatur im Monolithvorlauf nicht auszuschließen. Die Selbstzündung im Modell resultiert aus der Temperaturerhöhung auf über 490 °C infolge interner Wärmeströme. Diese Wärmeströme lassen sich konstruktiv und durch die Anpassung der Betriebspunkte beeinflussen. Als konstruktive Maßnahme kann der Wärmestrom aus dem inneren Reformatringspalt durch die Verlängerung des Monolith-Keramikpapiers in den Bereich der Luftkammer verringert werden. Die Temperatur des Reformats im inneren Ringspalt wird durch die Betriebsparameter beeinflusst. Abhängig vom Betriebspunkt des integrierten Wärmeübertragers sinkt die Reformatemperatur bis in den Bereich des Monolithvorlaufs in der Größenordnung von 80 K. Durch das geänderte Wärmeübertragerkonzept kühlt das Reformat bis zum Ende des inneren Ringspalts in den Reaktoren ATR 11 und ATR 12 in der Größenordnung von 150 K ab. In diesen Reaktoren ist demzufolge mit einer geringeren Tendenz zur Selbstzündung zu rechnen. Die thermischen Wechselwirkungen der integrierten Wärmeübertrager werden im folgenden Kapitel umfassend diskutiert.

6.4 Zusammenfassende Bewertung der Modelle und Methoden

Die genaue Auslegung der integrierten Verdampfer und Wärmeübertrager erforderte die Berücksichtigung der internen Wärmeströme in den Reaktoren. Somit wurden die chemischen Reaktionen in die Modellierung der autothermen Reformer und der katalytischen Brenner eingebunden. Als Grundlage der Reaktionsmodellierung wurden, auf Basis der Methode der statistischen Versuchsplanung, umfassende Prototypentests der autothermen Reformer und der katalytischen Brenner durchgeführt.

Zur Darstellung der thermischen Wechselwirkungen der chemischen Reaktionen der autothermen Reformierung wurde ein vereinfachter Modellierungsansatz auf Basis von Quell- und Senktermen der Energie und der Reaktanden hergeleitet. Die Datenbasis hierzu lieferten Prototypentests mit den Reaktoren ATR 9.1 und ATR 9.2. Die experimentelle Validierung lieferte eine maximale lokale Abweichung der simulierten Temperatur von 6,1 % und eine maximale lokale Abweichung eines Komponentenmassenanteils von 11,7 %. Das Ähnlichkeitstheoretische Modell eignet sich somit zu Modellierung der thermischen Einflüsse der autothermen Reformierung im definierten Betriebsbereich des Reaktors. Wechselwirkungen zwischen der Eduktzusammensetzung und den chemischen Reaktionen werden dabei vereinfacht dargestellt. Die Modellierung der Reaktionen der katalytischen Verbrennung basiert auf dem Arrhenius-Ansatz. Die entsprechenden Modellparameter aus der Literatur wurden anhand von durchge-



× Ungefähre Lage der Thermoelemente in der ATR-Mischkammer

Abb. 6.8: Temperaturprofil in der Mischkammer des ATR 9.2 ohne exotherme Vorreaktionen und unter Berücksichtigung der diskutierten Reaktionsmodelle, Verlauf der Reaktionsrate der exothermen Vorreaktion im erweiterten Modell

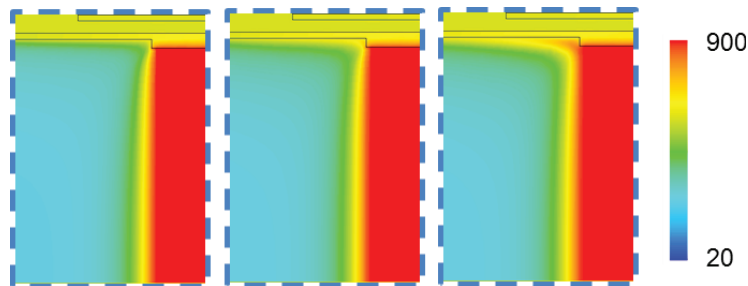


Abb. 6.9: Temperaturprofil im Monolithvorlauf des ATR 9.2 ohne exotherme Vorreaktionen (links), mit exothermer Vorreaktion ohne Selbstzündung (mitte) und mit exothermer Vorreaktion und Selbstzündung (rechts)

fürten Prototypentests am CAB 2 experimentell validiert und angepasst. Insgesamt wurden validierte Modelle zur Berücksichtigung der chemischen Reaktionen bei der Auslegung der integrierten Wärmeübertrager erarbeitet.

Zur Untersuchung der exothermen Vorreaktionen wurde ein vereinfachtes Modell der ATR-Mischkammer auf Basis von idealen Reaktoren hergeleitet und validiert. Das System idealer Reaktoren wurde dabei an das simulativ und experimentell ermittelte Verweilzeitverhalten in der Mischkammer angepasst. Das modellierte Verweilzeitverhalten wich dabei um unter 15 % von dem in Strömungsvisualisierungsexperimenten ermittelten Verweilzeitverlauf ab. Das in Matlab/Simulink implementierte Modell erlaubt die Untersuchung umfassender Reaktionskomplexe mit einem wesentlich geringeren Aufwand als die entsprechenden CFD-Simulationen. Auf der Basis experimenteller Untersuchungen und der qualitativen Zusammenhänge aus der Literatur wurde ein vereinfachtes Reaktionsmodell der exothermen Vorreaktionen in das CFD-Modell implementiert und im hergeleiteten Reaktionssystem simuliert. Das vereinfachte Modell dient als Werkzeug der qualitativen Analyse des Reaktionsverhaltens von exothermen Vorreaktionen. Das simulierte Reaktionsverhalten der exothermen Vorreaktionen zeigt dabei ein lokal stark abgegrenztes Reaktionsgebiet als schmales Band im Vorlauf des Monolithen und an der Trennwand zwischen Mischkammer und Reformat-Ringspalt. Durch die internen Wärmeströme in diesem Bereich kann hier eine Selbstzündung des Reformats auftreten. Anhand der Ergebnisse wurden erste Modifikationen der Konstruktion und der Betriebsparameter definiert. Als einfache Maßnahme zur Unterdrückung der Vorreaktionen bietet sich die zusätzliche thermische Isolierung der Mischkammer im Bereich der Reformatumlenkung an.

7 Modellierung und Auslegung der integrierten Wärmetauscher

In den vorangegangenen Kapiteln wurde die Modellierung modulierbar Einspritzsysteme, der Gemischbildung und der chemischen Reaktionen in den Reaktoren der Brenngaserzeugung behandelt. Somit stehen die in Kapitel 4 definierten Modelle zur Beschreibung der Randbedingungen der Wärmeübertragung zur Verfügung. Darauf aufbauend werden in diesem Kapitel Modelle und Methoden zur Simulation der integrierten Verdampfer hergeleitet und an den Fallbeispielen der Kernkomponenten CAB 3, ATR 10 und ATR 11 angewendet. Das Hauptaugenmerk liegt dabei auf der Darstellung der Strömungs- und Siedephänomene in einem aufgesprühten Tropfenspray. Die Kombination der in dieser Arbeit hergeleiteten Modelle und Methoden führt somit zu einer vollständigen Beschreibung der jeweiligen Reaktoren in einem einzelnen CFD-Modell.

7.1 Modellierung der Wärmeübertragung in einem aufgesprühten Tropfenspray

Wie in den Kapiteln 2 bis 4 diskutiert, erfordert die Modellierung der Phasenübergangsphänomene eine Weiterentwicklung der CFD-Standardmodelle und Methoden. Ebenso ist eine genaue Kenntnis der Lage der charakteristischen Siedepunkte erforderlich. Durch die vielfältigen Einflussfaktoren lassen sich die charakteristischen Siedepunkte eines aufgesprühten Tropfensprays nicht mehr eindeutig, nach den in Kapitel 2 genannten Definitionen, bestimmen. Im Folgenden wird der Nukiyamapunkt als das lokale Maximum der übertragenen Wärmestromdichte in Abhängigkeit von der Temperatur definiert. Einer Definition von Wrock folgend, ist der Leidenfrostpunkt derjenige Punkt, ab dem „eine Steigerung der Wandtemperatur allein keine ausgeprägten Auswirkungen mehr auf Ausbreitungs- und Kontraktionsverhalten des Tropfens hat“ [155].

7.1.1 Experimentelle Untersuchung der Wärmeübergangsphänomene

Vielfältige Untersuchungen befassen sich mit der experimentellen Bestimmung des Siedeverhaltens aufgesprühter Tropfensprays [54, 55, 59]. Der Fokus der Arbeiten liegt auf der Anwendung als Kühlverfahren für heiße Metalle. Typische Betriebspunkte sind Oberflächentemperaturen in der Größenordnung von 900 °C und Wasserbeaufschlagungsdichten von bis zu 0,2 kg/m²/s bei der Verdampfungskühlung und über 5 kg/m²/s bei der Spray- und Spritzwasserkühlung. Die Tropfendurchmesser liegen zwischen 35 μm und 600 μm [54, 156]. Die vorliegenden Ar-

beiten decken somit die Betriebsbereiche der Verdampfer im Brenngaserzeugungssystem nicht ausreichend ab. Um eine Datenbasis zur Auslegung der Wärmeübertrager bereitzustellen, wurde ein Experiment zur Messung des Wärmeübergangs von einer beheizten Metallplatte auf ein Wassertropfenspray entwickelt und konstruiert. Der Versuchsaufbau wird in Anhang D.1 beschrieben. Im Experiment wurde eine mit einem Tropfenspray beaufschlagte Heizplatte auf eine konstante Temperatur geregelt. Die benötigte Heizleistung wurde abhängig von den charakteristischen Sprayparametern gemessen. Aus diesen Daten und aus der parallel bestimmten effektiven Kontaktfläche A_{eff} lässt sich der Wärmeübergangskoeffizient α in Abhängigkeit der Wasserbeaufschlagungsdichte und der Wandtemperatur T_W bestimmen. Um hierbei den reinen Effekt des Tropfensprays zu berücksichtigen, wurden die gemessenen Wärmeströme durch Referenzmessungen ohne Wasserbeaufschlagung bereinigt: $Q_{Spray} = Q - Q_{Leerlauf}$.

$$\alpha(\dot{m}, T) = \frac{Q_{Spray}}{A_{eff} \cdot (T_W - T_{Tropfen})} \quad (7.1)$$

Im Versuch können die Wasserbeaufschlagungsdichte, die Oberflächentemperatur und in geringem Maße die Weberzahlen des Sprays variiert werden. Aufgrund des temperaturabhängigen Verlaufs der Wärmeübergangskoeffizienten, analog zur Nukiyamakurve, lässt sich die Methode der statistischen Versuchplanung nicht zur Optimierung dieses Experiments verwenden. Daher wurde in einer Serie stationärer Messungen ein gleichmäßiges Netz von Messpunkten in den Betriebsbereich zwischen Oberflächentemperaturen von 200 °C bis 600 °C und Wasserbeaufschlagungsdichten von 0,3 kg/m²/s bis 0,5 kg/m²/s gelegt. Durch die begrenzte Heizleistung konnte, für Wassermassenströme oberhalb von 0,43 kg/m²/s, nicht der vollständige Temperaturbereich stationär untersucht werden. Parallel zur Messung der Wärmeströme wurde das Siede- und Strömungsverhalten der Tropfen mit einem Hochgeschwindigkeitsmikroskop aufgenommen. Die Hochgeschwindigkeitsanalyse erlaubt eine optische Differenzierung der charakteristischen Siedephänomene und die Bestimmung der effektiven Wechselwirkungsfläche. Zur Berechnung der gemittelten Oberflächentemperatur wurden nur die Thermoelemente im Bereich der effektiven Wechselwirkungsfläche berücksichtigt. Die Temperaturregelung erfolgte über die Thermoelemente im Aufsprühbereich, so dass die für die Wärmeübertragung relevanten Oberflächentemperaturen geringfügig von den Regeltemperaturen abweichen können. Die in Abbildung 7.1 über der Oberflächentemperatur dargestellte bereinigte Heizleistung zeigt zwei unterschiedliche charakteristische Bereiche. Für Temperaturen unterhalb des Leidenfrostpunktes zwischen 350 °C - 400 °C liegen die gemessenen Wärmemengen zwischen 1,25 kW und 2 kW. Abbildung 7.2 zeigt für verschiedene Oberflächentemperaturen die entsprechende Strömungsbilder des Tropfensprays bei einer Wasserbeaufschlagungsdichte von 0,4 kg/m²/s. Im äußeren Bereich der blau gestrichelten Auftrefffläche bildet sich im stationären Zustand ein geschlossener Wasserfilm aus. Hierdurch wird die blau eingefärbte effektive Wechselwirkungsfläche vergrößert. Mit steigender Wasserbeaufschlagungsdichte nimmt die effektive Wechselwirkungsfläche bis zu einem Maximalwert zu, an dem der Film beginnt über den Rand der Heizplatte abzufließen. Im inneren Bereich der Aufsprühfläche reicht die lokale Wasserbeaufschlagungsdichte nicht zur Filmbildung. Die Tropfen verdampfen hier als Einzeltropfen vollständig oder strömen radial in den äußeren Bereich der Aufsprühfläche. Abbildung 7.2 zeigt eine ungleichmäßige Benetzung der beheizten Oberfläche mit lokalen Austrocknungen im Be-

7.1. Modellierung der Wärmeübertragung in einem aufgespritzten Tropfenspray

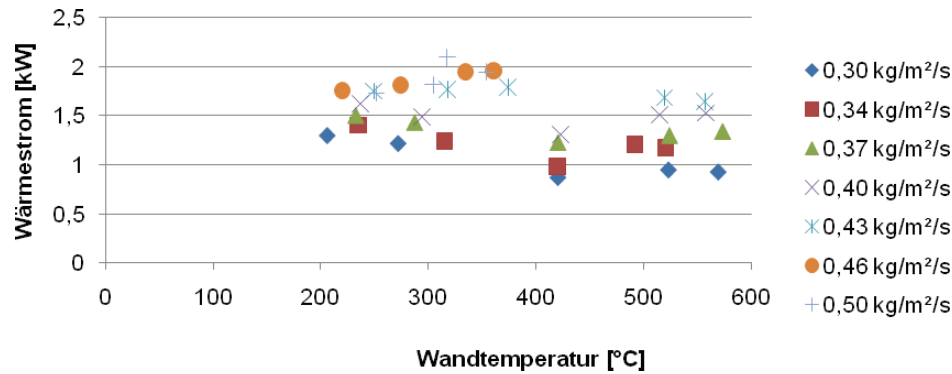


Abb. 7.1: Übertragener Wärmestrom in Abhängigkeit von der effektiven Oberflächentemperatur und der Wasserbeaufschlagungsdichte

reich des Wasserfilms. Die trockenen Stellen resultieren aus Inhomogenitäten des Sprays und der Oberflächenbeschaffenheit. Das stationäre Verhalten zeigt, dass das in den Film eingebrachte Wasser vollständig verdampft. Somit steigt die übertragene Wärmemenge mit dem aufgespritzten Wassermassenstrom. Mit steigender Oberflächentemperatur sinkt die Verdampfungszeit des Wassers, wodurch es zu einer geringeren Ausbreitung des Wasserfilms kommt. Die Weberzahlen im Tropfenspray liegen direkt hinter der Einspritzung oberhalb von $We = 100$. Direkt vor dem Aufprall auf der Heizfläche liegen die Weberzahlen in der Größenordnung von $We = 10$. Im Temperaturbereich unterhalb des Leidenfrostpunktes kommt es somit nach Abbildung 2.22 zur Benetzung der Oberfläche. Vereinzelte Tropfen werden von der Luftströmung oder durch den Auswurf von Sekundärtropfen aus dem Verdampfungssystem getragen. Der beobachtete Tropfentransportmechanismus ist nicht temperaturabhängig. Da der Wärmetransport durch die Verdampfung des Wasserfilms dominiert wird, ist somit keine messbare Abhängigkeit der übertragenen Wärmemenge von der Oberflächentemperatur zu beobachten. Aufgrund der geringen Filmdicke treten die in Kapitel 2 diskutierten Effekte des Blasensiedens nur in vermindertem Maße auf. Für Wasserbeaufschlagungsdichten oberhalb von $0,43 \text{ kg/m}^2/\text{s}$ steigt der übertragene Wärmestrom mit der Oberflächentemperatur. In diesem Bereich reicht die Filmdicke zur Ausbildung von Siedezuständen, ähnlich dem Behältersieden. Für niedrigere Wasserbeaufschlagungsdichten tritt lediglich in den dickeren Randbereichen des Wasserfilms vereinzelt Blasenbildung auf. Die Bildung von großen Dampfblasen führt direkt zu einem Aufreißen des Films wodurch sich mit steigenden Temperaturen die benetzte Fläche verringert. Somit bildet der Temperaturbereich oberhalb von etwa 150°C bis zum Leidenfrostpunkt einen Übergangsbereich zwischen ausgetrockneter und benetzter Oberfläche.

Im Temperaturbereich oberhalb des Leidenfrostpunktes verringern sich die gemessenen Wärmeströme im Schnitt um etwa $0,5 \text{ kW}$. Analog zum Verhalten im unteren Temperaturbereich steigt der übertragene Wärmestrom mit der aufgespritzten Wassermenge. Das in Abbildung 7.2 dargestellte Strömungsbild des Tropfensprays zeigt eine gleichmäßige Nassdampfströmung über der Heizplatte. Die aufgespritzten Tropfen verdampfen zu einem Großteil sofort beim

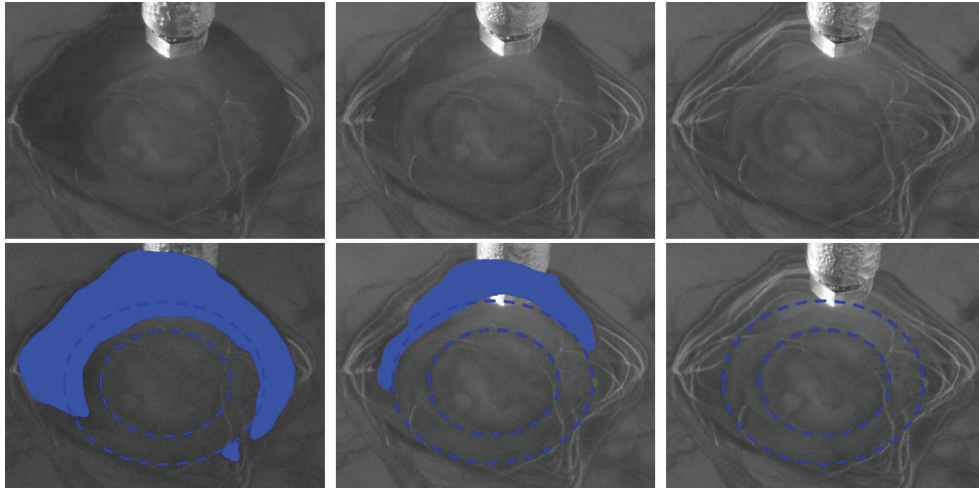


Abb. 7.2: Sprühbilder und daraus resultierende effektive Wechselwirkungsflächen bei einem Wasserbeaufschlagungsdichte von $0,4 \text{ kg/m}^2/\text{s}$ und einer Oberflächentemperatur von $200 \text{ }^\circ\text{C}$ (links), $300 \text{ }^\circ\text{C}$ (mitte) und $400 \text{ }^\circ\text{C}$ (rechts)

Kontakt mit der Oberfläche. Die nicht vollständig verdampften Tropfen werden, wie Abbildung 2.22 für Temperaturen oberhalb des Leidenfrostpunktes zeigt, von der Oberfläche reflektiert. Abhängig von der Weberzahl kann es zum Auswurf von Sekundärtropfen kommen. Für Wasserbeaufschlagungsdichten unterhalb von $0,43 \text{ kg/m}^2/\text{s}$ steigt die übertragene Wärme mit dem Wassermassenstrom. Dies ist auf eine Zunahme der effektiven Wechselwirkungsfläche infolge der höheren Tropfenanzahl und auf die gesteigerte Weberzahl im Spray zurückzuführen. Die hohe Strömungsgeschwindigkeit führt zu einer kurzen Verweilzeit der Tropfen über der Platte. Somit verlässt ein, im Vergleich größerer, Wassermassenstrom das System ohne vollständig zu verdampfen. Dieser Strömungseffekt erklärt die beobachtete Abnahme der durchschnittlich übertragenen Wärmemenge. Abbildung 7.1 zeigt, dass die übertragenen Wärmemenge mit steigender Oberflächentemperatur geringfügig zunimmt. Dieser Effekt ist auf eine gesteigerte Verdampfungseffektivität zurückzuführen.

Unter Berücksichtigung der optisch bestimmten effektiven Wechselwirkungsflächen lässt sich die in Abbildung 7.3 dargestellte Wärmestromdichte $\dot{q} = \dot{Q}/A_{\text{eff}}$ herleiten. Die Wärmeübergangskoeffizienten werden nach Gleichung (7.1) berechnet. Oberhalb des Leidenfrostpunktes liegen die ermittelten Wärmestromdichten um den Faktor 2 bis 3 über den entsprechenden Wärmestromdichten im unteren Temperaturbereich. Für Wasserbeaufschlagungsdichten oberhalb von $0,43 \text{ kg/m}^2/\text{s}$ bildet sich ein geschlossener Wasserfilm auf der Platte, so dass der Leidenfrostpunkt nicht überschritten wird. Demzufolge wird die effektive Wechselwirkungsfläche in diesem Punkt gleich der Auftrefffläche angenommen. Für niedrigere Wasserbeaufschlagungsdichten wird die angenommene effektive Wechselwirkungsflächen anhand der Wassermassenströme skaliert. Analog zur übertragenen Wärmemenge lässt sich eine Abhängigkeit

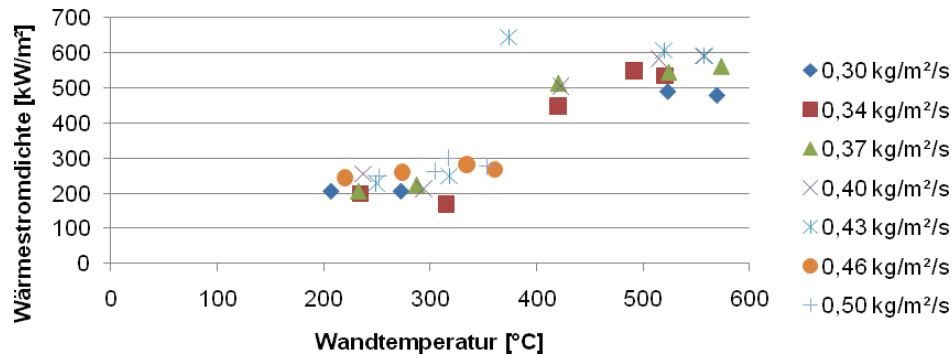


Abb. 7.3: Übertragene Wärmestromdichten in Abhängigkeit der effektiven Oberflächentemperatur und der Wasserbeaufschlagungsdichte

der Wärmestromdichte von der Wasserbeaufschlagungsdichte erkennen. Der Temperaturbereich unterhalb des Leidenfrostpunkts zeigt nur eine geringe Abhängigkeit von der Beaufschlagungsdichte. Die in Abbildung 7.1 dargestellte Zunahme der übertragenen Wärmemenge wird durch eine entsprechende Flächenausbreitung des Wasserfilms nahezu ausgeglichen. Die zu beobachtende geringe Steigerung der Wärmestromdichte mit dem Wassermassenstrom ist somit auf das Strömungsverhalten der Wassertropfen und des Wasserfilms zurückzuführen.

Das dargestellte Netz stationärer Messpunkte basiert auf einer Schrittweite der Temperatur von 100 K. Somit lassen sich die Übergänge zwischen den einzelnen Siedezuständen nicht genau auflösen. Um die exakte Lage der charakteristischen Siedepunkte zu bestimmen, wurden instationäre Messungen durchgeführt. Gleichzeitig ermöglicht das instationäre Verfahren die Untersuchung der Wärmeübergangsphänomene im Bereich hoher Massenströme oberhalb von 0,43 kg/m²/s und hoher Temperaturen oberhalb von 600 °C. Im instationären Experiment wurde die Heizplatte ohne Wasserbeaufschlagung auf 700 °C aufgeheizt. Für die Messung wurden die Heizelemente abgeschaltet und die Wassereinspritzung gestartet. Die aus der Wasserbeaufschlagung resultierende Abkühlung der Heizplatte wurde über der Zeit aufgenommen. Die gemessenen Werte wurden wiederum mit einem Leerlaufversuch bereinigt.

Abbildung 7.4 zeigt den Verlauf der Abkühlgeschwindigkeit in Abhängigkeit der Wandtemperatur, bei einer Wasserbeaufschlagungsdichte von 0,4 kg/m²/s. Dargestellt sind die gemessenen Kurven bei einer über der gesamten Oberfläche gemittelten Wandtemperatur und bei einer über den Aufsprühbereich gemittelten Oberflächentemperatur. Da die bereinigte Abkühlung durch die direkten Tropfen-Wand Wechselwirkungen dominiert wird, ist der über die Aufsprühfläche gemittelte Verlauf relevant. Der dargestellte Verlauf zeigt die drei charakteristischen Siedepunkte. Der Übergangsbereich beginnt im Punkt ONB bei einer Temperatur von 160 °C. Die Nukiyamatemperatur liegt bei $T_N = 258$ °C, der Leidenfrostpunkt bei $T_L = 360$ °C. Aus dem experimentell ermittelten Abkühlverlauf lässt sich nach Gleichung (7.2) die abgegebene Wärmeleistung ermitteln. Hierbei werden die Masse und die temperaturabhängige spezifische Wärmekapazität der Heizplatte berücksichtigt. Dies erlaubt, analog zum stationären Experiment, die Berechnung der Wärmeübergangskoeffizienten nach Gleichung (7.1). Zur Berechnung der

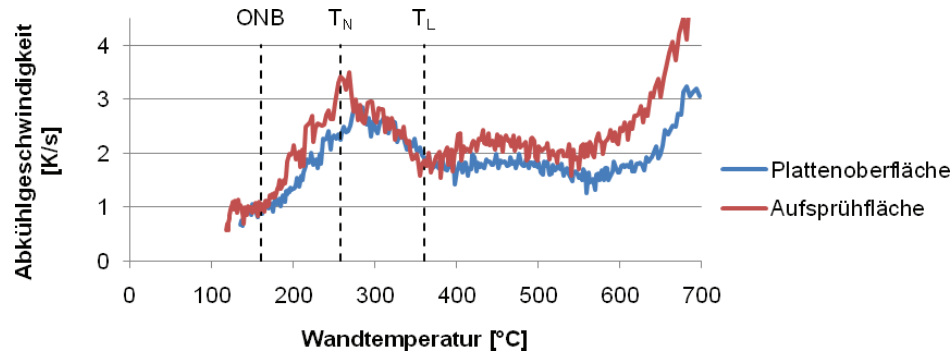


Abb. 7.4: Instationärer Abkühlverlauf von 700 °C bei einer Wasserbeaufschlagungsdichte von 0,4 kg/m²/s, in Bezug auf die gesamte Plattenoberfläche (blau) und auf die Aufsprühfläche (rot)

abgegebenen Wärmemenge wird die über der gesamten Oberfläche gemittelte Temperaturdifferenz verwendet. Der ermittelte Verlauf wird jedoch weiterhin auf die gemittelten Temperaturen im Aufsprühbereich bezogen.

$$\dot{Q}_{\text{Spray}} = m_{\text{Platte}} \cdot c_{p\text{Platte}} \cdot \Delta T \quad (7.2)$$

7.1.2 Fehleranalyse und Herleitung der Wärmeübergangskoeffizienten

Die Berechnung der Wärmeübergangskoeffizienten basiert auf der Bestimmung des übertragenen Wärmestroms, der effektiven Wechselwirkungsfläche und der Oberflächentemperatur. Die experimentelle Ermittlung dieser drei Werte ist jeweils fehlerbehaftet. Die Oberflächentemperatur wird über die Wechselwirkungsfläche gemittelt. Im Übergangsbereich oberhalb von 160 °C entstehen durch die lokale Austrocknung der Heizfläche, stark inhomogene Temperaturprofile. Bei einer Oberflächentemperatur von 300 °C und einem Wassermassenstrom von 0,4 kg/m²/s wurde eine maximale Temperaturabweichung von unter 50 % ermittelt. Diese Ungenauigkeit resultiert aus der in Abbildung 7.2 gezeigten lokalen Austrocknung der Wechselwirkungsfläche. Unter der Annahme, dass die Bereiche niedriger Oberflächentemperatur den Wärmeübergang dominieren, wird eine tendenziell zu hohe Oberflächentemperatur bestimmt. Im Bereich des Filmsiedens bildet sich eine gleichmäßige Strömung über der Heizfläche aus. Bei einer Oberflächentemperatur von 500 °C und einem Massenstrom von 0,4 kg/m²/s wurde eine maximale Temperaturabweichung von unter 11 % ermittelt. Im Bereich des Filmsiedens wird die mit dem Wassermassenstrom skalierte Aufprallfläche als effektive Wechselwirkungsfläche angenommen. Zur Fehleranalyse wurde aus dem Massenstrom, der Tropfengröße und der Verdampfungszeit der ständig beaufschlagte Flächenanteil der Auftrefffläche berechnet. Als maximaler Fehler der angenommenen Wirkfläche im Filmsieden wurde hieraus eine Abweichung in der Größenordnung von 20 % ermittelt. Im Bereich des Blasensiedens und des Übergangssiedens verringert

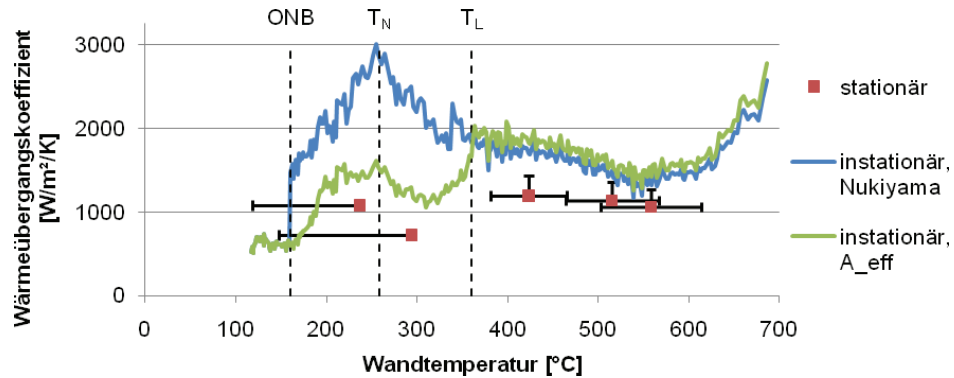


Abb. 7.5: Auf Basis der stationären und instationären Experimente berechnete Wärmeübergangskoeffizienten [158]

sich der Fehler, da der Wärmeübergang hier durch die optisch ermittelbare Fläche des Wasserfilms dominiert wird. Die Messung der übertragenen Wärmemenge erfolgt im stationären Experiment mit einer Messungengenauigkeit von 1 % [157]. Im instationären Experiment führt die inhomogene Auskühlung der Platte zu einer ungenauen Berechnung des Wärmestroms aus der Abkühlgeschwindigkeit. Dieser Effekt ist, wie Abbildung 7.4 zeigt, besonders stark ausgeprägt bei hohen Abkühlgeschwindigkeiten oberhalb von 2 K/s und bei inhomogenen Oberflächeneffekten im Übergangsbereich. Die Genauigkeit sinkt dabei mit steigender Abkühlgeschwindigkeit. Die maximale Ungenauigkeit des ermittelten Wärmestroms liegt hier in der Größenordnung von 25 %.

Abbildung 7.5 zeigt die berechneten Wärmeübergangskoeffizienten für die stationäre und die instationäre Messung unter Berücksichtigung der diskutierten Fehlerquellen. Die horizontalen Fehlerbalken der stationären Werte berücksichtigen die Ungenauigkeit infolge eines inhomogenen Temperaturprofils über der Oberfläche. Die vertikalen Fehlerbalken resultieren aus einer ungenauen Bestimmung der Wirkfläche. Im instationären Experiment lassen sich die Wechselwirkungsflächen nicht genau bestimmen. Der blaue dargestellte instationäre Verlauf wurde qualitativ an den Verlauf der Nukiyamakurve angepasst [158]. Die hieraus ermittelten effektiven Wirkflächen sind, im Vergleich zum stationären Fall, zu gering. Zur Berechnung des grün dargestellten instationären Verlaufs wurden die effektiven Wechselwirkungsflächen des jeweiligen stationären Versuchs mittels Intra- und Extrapolation auf den gesamten Temperaturbereich übertragen. Aus der so bestimmten Kurve lassen sich die unterschiedlichen Siedeprozesse ablesen. Im geschlossenen Wasserfilm unterhalb des Leidenfrostpunktes treten in vermindertem Maße die charakteristischen Siedezustände des Behältersiedens auf. Entsprechend folgen die ermittelten Wärmeübergangskoeffizienten qualitativ einer Nukiyamakurve zwischen 500 $\text{W/m}^2/\text{K}$ und 1500 $\text{W/m}^2/\text{K}$. Für Spraykühlung und Filmkühlung bei einer Oberflächentemperatur von 900 $^{\circ}\text{C}$ und einer Wasserbeaufschlagungsdichte von 0,2 $\text{kg/m}^2/\text{s}$ wird in der Literatur ein Wärmeübergangskoeffizient im Bereich von 300 $\text{W/m}^2/\text{K}$ angegeben [156]. Der um den Faktor 2 bis 5 größere Wärmeübergangskoeffizient im Tropfenspray resultiert aus der

hohen Verdampfungseffektivität im Film und der direkten Verdampfung von Einzeltropfen in den nicht benetzten Teilgebieten der Auftrefffläche. Oberhalb des Leidenfrostpunktes wird die Wärmeübertragung durch den Direktkontakt beim Tropfenprall dominiert. Der Wärmeübergangskoeffizient sinkt bis zu einer Temperatur von etwa 550 °C von 2000 W/m²/K auf 1500 W/m²/K. Dieser Effekt ist auf kinetische Effekte und auf eine ungenaue Bestimmung der effektiven Wechselwirkungsfläche zurückzuführen. Ab 550 °C kommt es zu einem starken Anstieg des Wärmeübergangskoeffizienten. Für eine Oberflächentemperatur von 900 °C und einer Wasserbeaufschlagungsdichte von 0,2 kg/m²/s liegt der maximale Wärmeübergangskoeffizient der Verdampfungskühlung nach [156] bei 600 W/m²/K. Eine Extrapolation der Wärmeübergangskoeffizient der Verdampfungskühlung auf eine Wasserbeaufschlagungsdichte von 0,4 kg/m²/s ergibt einen Wert von 1200 W/m²/K. Durch die Tropfendurchmesser in der Größenordnung unter 30 µm und die direkte Reflektion der nicht vollständig verdampften Tropfen, zeigt die experimentell untersuchte Wärmeübertragung die Effekte der Verdampfungskühlung auch für Wasserbeaufschlagungsdichten oberhalb von 0,2 W/m²/K.

Um eine hohe Modellgenauigkeit zu erzielen, basiert das im Folgenden hergeleitete CFD-Modell nicht auf den ermittelten Wärmeübergangskoeffizienten. Als Grundlage der Modellierung der Wärmeübergangsphänomene dienen die stationär gemessenen übertragenen Wärmemengen. Die verwendete Datenbasis ist somit unabhängig von der nur ungenau bestimmbaren effektiven Wechselwirkungsfläche. Die in Abbildung 7.5 gezeigte Ungenauigkeit der Temperaturbestimmung im Übergangsbereich lässt sich durch die Wahl und die Gewichtung der Temperaturmesswerte, entsprechend der optisch ermittelten Wechselwirkungsflächengeometrie, minimieren. Generell ist der flächenbezogene Wärmeübertragungsmechanismus, wie Abbildung 7.3 zeigt, nur in geringem Maße temperaturabhängig.

7.1.3 Herleitung des CFD-Modells für ebene Flächen

Zur Modellierung der Strömungs- und Wärmeübergangsphänomene eines aufgespritzten Tropfensprays wird zwischen den Temperaturbereichen oberhalb und unterhalb der Leidenfrosttemperatur unterschieden. Unterhalb des Leidenfrostpunktes kommt es zu einer Benetzung der Oberfläche mit direktem Flüssigkeits-Wand Kontakt. In den lokal ausgetrockneten Stellen der Aufsprühfläche lässt sich das Verhalten eines einzelnen Tropfens im Spray als Einzeltropfenprall beschreiben. In den Bereichen geschlossener Wasserfilme treten in verringertem Maße die für das Behälter- und Strömungssieden charakteristischen Siedezustände auf. Bei einer Oberflächentemperatur von 150 °C beginnt der Übergangsbereich mit verstärkter lokaler Austrocknung der Heizfläche. Für eine Wasserbeaufschlagungsdichte von 0,4 kg/m²/s zeigt Abbildung 7.6 die mit den FLUENT Wechselwirkungsmodellen berechneten Wärmestromdichten und azum Vergleich die experimentell ermittelten Werte. Die gestrichelt dargestellte Kurve zeigt analog zu Abbildung 2.22 den qualitativen Verlauf der Nukiyamakurve für Behältersieden. Die Lage des Leidenfrostpunktes im Tropfenspray ist durch die kinetischen Effekte des Tropfenpralls in den Bereich höherer Temperaturen verschoben. Bei 200 °C Oberflächentemperatur beträgt der mit dem *wall-film* Modell berechnete Wärmestrom etwa 25 % des experimentell ermittelten Wertes. Diese Differenz ist auf die Vernachlässigung des Blasensiedens und der kinetischen Aufpralleffekte im *wall-film* Modell zurückzuführen. Durch die geringe Filmdicke des

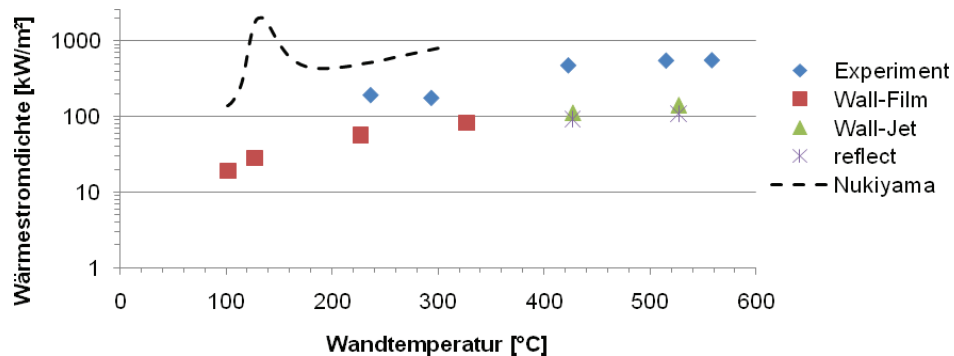


Abb. 7.6: Vergleich der experimentell ermittelten Wärmestromdichten mit CFD-Simulationen bei unterschiedlichen Wechselwirkungsmodellen und dem qualitativen Verlauf der Nukiyamakurve für Behältersieden, Wasserbeaufschlagungsdichte im Bereich $0,4 \text{ kg/m}^2/\text{s}$

benetzenden Wasserfilms können sich die charakteristischen Siedephänomene nicht vollständig ausbilden, so dass die experimentell ermittelten Werte bei etwa 50 % des qualitativen Nukiyamaverlaufs liegen. Mit steigender Oberflächentemperatur kommt es im Übergangsbereich zu einer verstärkten lokalen Austrocknung der Heizfläche, so dass sich die experimentellen und die modellierten Werte annähern. Dies zeigt, dass das Wärmeübergangsverhalten in diesem Bereich durch den geschlossenen Wasserfilm dominiert wird. Im Temperaturbereich oberhalb der Leidenfrosttemperatur finden sich in der Literatur zwei Modellierungsansätze zur Beschreibung des Wärmeübergangs [54]. Der erste Ansatz basiert auf der Annahme, dass der Wärmestrom zwischen Tropfenspray und Wand, analog zum Filmsieden, durch einen Dampffilm übertragen wird [54]. Ein Überblick über entsprechende Modelle findet sich in [155]. Das Wärmeübergangsverhalten entspricht somit dem in Abbildung 7.6 ebenfalls dargestellten *wall-jet* Modell. Oberhalb der Leidenfrosttemperatur liegen die mit dem *wall-jet* Modell berechneten Wärmestromdichten bei etwa 20 % der experimentell ermittelten Werte. Die auftreffenden Tropfen werden unter Bildung von Sekundärtropfen reflektiert. Die mit dem *reflect* Modell berechneten Wärmeübergangskoeffizienten sind nahezu deckungsgleich mit den Werten des *wall-jet* Modells. Die Differenz zwischen den experimentellen und den modellierten Werten ist auf die Vernachlässigung des direkten Tropfen-Wand Kontakts beim Tropfenprall zurückzuführen. Der experimentell ermittelte Wärmeübergang wird durch den kurzzeitigen Wandkontakt des Tropfens beim Aufprall dominiert. Das entspricht dem zweiten bekannten Modellierungsansatz zur Berechnung des Wärmeübergangs zwischen Tropfen und Wand. Arbeiten hierzu finden sich in [54, 159–161]. Abbildung 7.6 zeigt, dass sowohl die Modelle zur Berechnung von Behälter- und Strömungssieden, als auch die CFD-Standardmodelle nicht zur Berechnung des Wärmeübergangs beim Tropfenprall geeignet sind. Um eine genaue Modellierung der Strömungs- und Wärmeübergangsphänomene zu ermöglichen, wird ein Modell und eine Methode auf Basis der experimentell ermittelten Werte hergeleitet.

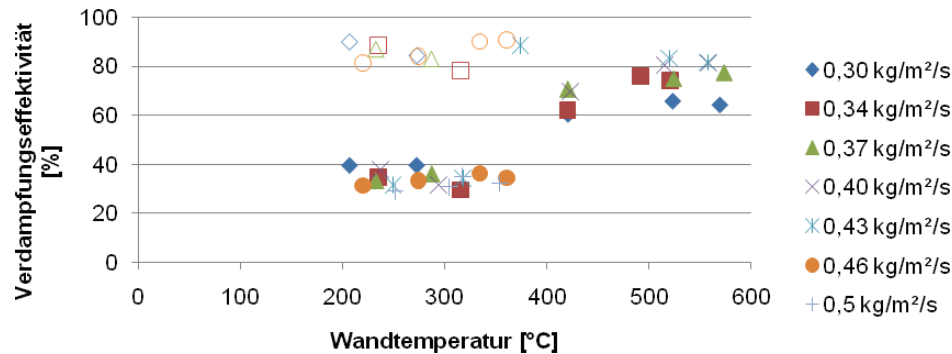


Abb. 7.7: Verdampfungseffektivität in Abhängigkeit von der effektiven Oberflächentemperatur und der Wasserbeaufschlagungsdichte, in Bezug auf die gesamte Wechselwirkungsfläche (leere Symbole) und auf die Auftrefffläche (gefüllte Symbole)

Die Modellierung der Wärmeübertragung bezieht sich auf das Verhalten des gesamten Sprays, so dass auch im Temperaturbereich oberhalb des Leidenfrostpunktes kein Einzeltropfenprall betrachtet wird. Die experimentell ermittelten Kennwerte werden somit auf die Auftrefffläche und nicht auf die effektive Wechselwirkungsfläche bezogen. Abbildung 7.7 zeigt die aus dem experimentell ermittelten übertragenen Wärmestrom berechnete Verdampfungseffektivität in Abhängigkeit von der Oberflächentemperatur und der Tropfenbeaufschlagungsdichte. Im Temperaturbereich unterhalb des Leidenfrostpunktes sinkt die Verdampfungseffektivität mit steigendem Wassermassenstrom. Dieser Effekt ist auf höhere Weberzahlen im Spray und somit einem vermehrten Auswurf von Sekundärtropfen zurückzuführen. Oberhalb der Leidenfrosttemperatur steigt die Verdampfungseffektivität mit der Tropfenbeaufschlagungsdichte. Generell steigt die Verdampfungseffektivität oberhalb der Leidenfrosttemperatur mit steigender Weberzahl und sinkendem Tropfendurchmesser [54].

Das im Folgenden hergeleitete Modell basiert auf der Annahme, dass die Wärmeübertragung durch den Phasenübergang der Wassertropfen dominiert wird. Somit lässt sich die übertragbare Wärmemenge als Verdampfungsmassenstrom ausdrücken. Abbildung 7.7 zeigt die experimentell ermittelten charakteristischen Zusammenhänge der Oberflächentemperatur, der Wasserbeaufschlagungsdichte und der Verdampfungseffektivität in einem aufgespritzten Tropfenspray. In einer iterativen Modellierungsmethodik lassen sich diese Ergebnisse in die CFD-Simulation übertragen. Um die Verdampfung der Tropfen auf der Aufsprühfläche zu gewährleisten wird hierbei das *trap* Wechselwirkungsmodell verwendet. Die Wasserbeaufschlagungsdichte ist durch den Wassermassenstrom und die Oberflächen- und Düsengeometrie gegeben. In einem ersten Simulationsschritt wird das Wärmeübertragungsverhalten mit dem Gesamtmassenstrom des Wassers berechnet. Die übertragene Wärmemenge wird hierbei von den Randbedingungen an der Prallfläche bestimmt. Die CFD-Simulation liefert eine erste Abschätzung der Wandtemperatur. In Abbildung 7.7 lässt sich mit der ermittelten Oberflächentemperatur und der gegebenen Tropfenbeaufschlagungsdichte die Verdampfungseffektivität an der Prallfläche ablesen. Im folgenden Iterationsschritt wird der aufgespritzte Wassermassenstrom mit der Verdamp-

fungseffektivität angepasst. Somit lässt sich für eine gegebene Wasserbeaufschlagungsdichte die Oberflächentemperatur und der Verdampfungsmassenstrom auf der Aufsprühfläche iterativ ermitteln. In der CFD-Simulation wird hierbei nur der tatsächlich verdampfende Wassermassenstrom direkt auf die Prallfläche aufgesprüht. Das nicht verdampfte Wasser wird, in Abhängigkeit der Oberflächentemperatur, über zusätzliche Modelleinspritzungen (*injections*) berücksichtigt. Im Temperaturbereich unterhalb der Leidenfrosttemperatur wird jeweils eine *injection* für die aus dem Film ausgeworfenen Sekundärtropfen und für den abfließenden Wasserfilm eingeführt. Die Sekundärtropfen werden über eine *surface-injection* an der Aufsprühfläche, der abfließende Film über eine *surface-injection* am äußeren Rand der Aufsprühfläche berücksichtigt. Im weiteren Verlauf der Oberfläche wird hierbei das *wall-film* Modell verwendet. Aus Abbildung 7.7 wird der Reflektionsanteil zu 10 % bis 20 % des Gesamtmassenstroms abgeschätzt. Als Eingangsparameter der zusätzlichen *injections* werden die Tropfentemperatur, der Tropfendurchmesser und die Geschwindigkeitsvektoren der Tropfen über eine zusätzliche Modellierung der Aufsprühfläche mit *wall-film* Randbedingung bestimmt. Um die Energiebilanz zu schließen, wird im Aufsprühbereich eine volumetrische Wärmesenke eingeführt, welche der Wärmemenge zum Aufheizen der restlichen Tropfen auf deren Modell-Eingangstemperatur entspricht. Im Temperaturbereich oberhalb der Leidenfrosttemperatur wird eine Reflektion der Tropfen als Hauptströmung des nicht verdampften Wassers angenommen. Die Tropfen werden analog zum unteren Temperaturbereich über eine zusätzliche *surface-injection* an der Aufsprühfläche eingeführt. Die Eingangsparameter der *surface-injection* werden hierbei durch eine zusätzliche CFD-Modellierung mit dem *reflect* Modell an der Aufsprühfläche bestimmt.

Durch das in dieser Modellierungsmethodik verwendete *trap* Modell verdampfen die Tropfen vollständig direkt beim Auftreffen auf der Oberfläche. Die hierzu benötigte Wärmemenge wird direkt der entsprechenden finiten Zelle entzogen. Das *trap* Modell beeinflusst hierbei nicht direkt den Wärmeübergang zwischen der Wand und der flüssigen Phase. Die Wärmeübertragung in die verdampfenden Tropfen findet durch die kontinuierliche Phase statt und ist somit durch den Wärmeübergangskoeffizienten an der Aufsprühfläche limitiert. Dieser ist zu gering, um die zur Verdampfung benötigte Wärmemenge auf die diskrete Phase zu übertragen. Abbildung 7.8 zeigt links das Temperaturprofil für das auf eine Heizfläche mit einer Temperatur von 600 °C aufgebrachte Tropfenspray. Der modellierte Fall entspricht hierbei dem durchgeführten Experiment. Die Abbildung zeigt keine Abnahme der Oberflächentemperatur in der Heizplatte. Aufgrund des limitierten Wärmeübergangskoeffizienten und des *trap* Modells erreicht die modellierte Strömung die physikalisch sinnlose Temperatur von 0 °C, welche als unterer Grenzwert festgelegt wurde. Um die direkte Wärmeübertragung von der Wand auf den benetzenden Film zu modellieren, wird die Wand in zwei Zonen unterteilt. Auf die feste Wand wird hierbei ein dünner poröser Körper mit einer Höhe von einer finiten Zellschicht modelliert. Die Porosität des Körpers liegt nahe Null, wodurch die Materialeigenschaften annähernd denen eines festen Körpers entsprechen. Die Strömungsgeschwindigkeit liegt aufgrund der Haftbedingung bei 0 m/s. Die Gleichungen für poröse Körper (3.44) bis (3.46) zeigen, dass sich die Bilanzgleichungen durch das Wegfallen des Geschwindigkeitsterms zu den einfachen Bilanzgleichungen für Festkörper und Fluide vereinfachen. Im Gegensatz zur festen Wand lässt der poröse Körper die diskreten Tropfen passieren. Die Tropfen strömen durch den porösen Körper und treffen auf die nun innen liegende Auftrefffläche, auf der die Tropfen nach dem *trap* Modell ver-

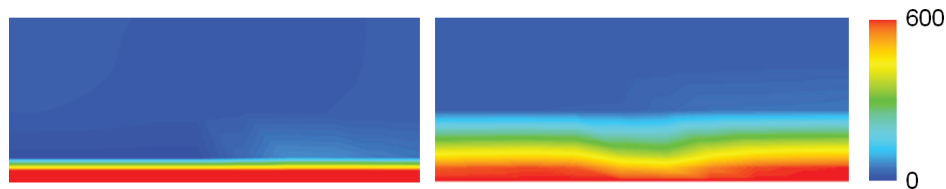


Abb. 7.8: Temperaturverlauf bei Wasserbeaufschlagung im Querschnitt der Platte, ohne (links) und mit (rechts) porösem Körper

dampfen. Der Wärmetransport in die entsprechenden Zellen findet durch thermische Leitung im porösen Körper statt. Der Wärmeübertragung ist somit nicht mehr durch den Wärmeübergangskoeffizienten zwischen der Wand und der kontinuierlichen Phase begrenzt. Abbildung 7.8 zeigt rechts das entsprechende Temperaturprofil mit porösem Körper. Die Temperatur in der freien Strömung liegt oberhalb der Einlasstemperaturen. Der poröse Körper selbst bildet eine dünne abgekühlte Oberflächenschicht des Festkörpers. Im Bereich der Auftrefffläche führt die Verdampfung zu einer starken Abkühlung die sich weiter in den Körper ausbreitet.

7.1.4 Herleitung eines geometriespezifischen CFD-Modells

Das im vorangegangenen Abschnitt hergeleitete Modell basiert auf den an einer ebenen Platte ermittelten experimentellen Werten. Die Auftreffflächen in den Wärmeübertragern des Brenngaserzeugungssystems sind jedoch als Klöpperböden oder als Hemisphären ausgeführt. Somit treten weitere geometrieabhängige Effekte auf. Abbildung 7.9 zeigt das Strömungsverhalten des Tropfensprays im katalytischen Brenner CAB 2 etwa 0,1 s nach Beginn der Einspritzung. Im dargestellten Visualisierungsexperiment wurde gefärbtes Wasser auf die beheizte Oberfläche der Reaktorvariante mit gläserner Außenwand aufgesprüht. Das Strömungsbild im linken Teil der Abbildung zeigt für Temperaturen unterhalb des Leidenfrostpunktes einen geschlossenen Wasserfilm auf der Aufsprühfläche des Klöpperbodens. Am äußeren Radius des Klöpperbodens reißt der Wasserfilm ab und strömt, zusammen mit den ausgeworfenen Sekundärtropfen, radial auf die Außenwand. Auf Höhe des Klöpperbodens bildet sich somit ein Tropfenband aus. Im weiteren Verlauf des Experiments fließen die beobachteten Filme am Klöpperboden und an der Außenwand in den Ringspalt ab. Ein Teil der aus dem Spray gerissenen und aus dem Film ausgeworfenen Tropfen strömt in einem torusförmigen Wirbel durch die Einspritzkammer, wodurch die gesamte Außenwand und der Düsenstock in diesem Bereich mit Tropfen beaufschlagt werden. Der rechte Teil der Abbildung zeigt das Strömungsverhalten im Temperaturbereich oberhalb der Leidenfrosttemperatur. Im Bereich der Auftrefffläche ist kein Wasserfilm zu erkennen. Die nicht verdampften Tropfen werden von der Oberfläche reflektiert. In dem sich ebenfalls ausbildenden Tropfenband ist in vereinzelt Tropfen Blasensieden zu erkennen. Das in Abbildung 7.10 dargestellte Modell basiert auf der Betrachtung der temperaturabhängigen über der Auftrefffläche gemittelten Wechselwirkungen. Die Effekte lokaler Inhomogenitäten sind in der experimentellen Datenbasis beinhaltet und werden in der Modellierung nicht gesondert aufgelöst. Das Modell beschreibt somit das Wärmeübertragungsverhalten auf der

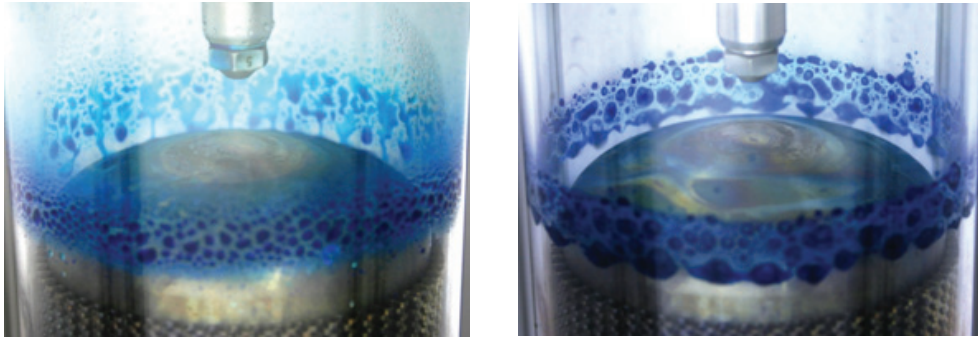


Abb. 7.9: Strömungsverhalten des eingefärbten Tropfensprays unterhalb (links) und oberhalb (rechts) des Leidenfrostpunktes etwa 0,1 s nach Beginn der Einspritzung

Auftrefffläche. Wie Abbildung 7.9 zeigt, wird das Strömungs- und Siedeverhalten der Tropfen stark durch die Aufsprühflächengeometrie beeinflusst. Im Temperaturbereich unterhalb des Leidenfrostpunktes verringert sich die Tropfenverweilzeit im Auftreffbereich durch das Abfließen des Wasserfilms. Anhand der Visualisierungsexperimente und der in Abbildung 7.13 dargestellten Modellierung des abfließenden Wasserfilms, wurde für einen Klöpperboden und eine Hemisphäre eine Tropfenverweilzeit in der Größenordnung von 0,1 s bis 0,15 s ermittelt. Aus der in Abbildung 7.2 optisch ermittelten Filmfläche lässt sich das Filmvolumen und hieraus, unter Berücksichtigung des Einspritzvolumenstroms, die Verweilzeit im ebenen Film abschätzen. Die Verdampfungszeit der Tropfen im Film entspricht dieser Verweilzeit und liegt in der Größenordnung von einer Sekunde. Durch die wesentlich geringere Verweilzeit können auf der Auftrefffläche eines Klöpperbodens oder einer Hemisphäre somit nur etwa 10 % bis 15 % des für eine ebene Fläche ermittelten Massenstroms verdampfen. In [61] wird eine Abnahme der kritischen Wärmestromdichte mit sinkendem Auftreffwinkel experimentell nachgewiesen. Im inneren Auftreffbereich mit hoher Wasserbeaufschlagungsdichte leitet sich hieraus eine Abnahme der kritischen Wärmestromdichte um etwa 10 % ab. Analog hierzu nimmt nach [162] die Leidenfrosttemperatur mit sinkendem Auftreffwinkel θ ab:

$$\frac{T_L(\theta) - T_S}{T_L(90^\circ) - T_S} = 0,028 \cdot \theta - 0,00019 \cdot \theta^2 \quad (7.3)$$

Gleichzeitig führt der im Vergleich zum Experiment erhöhte Betriebsdruck von 1,5 bar bis 1,7 bar zu einer Zunahme der Leidenfrosttemperatur um etwa 5 % [155]. Aus Gleichung (7.3) und der Berücksichtigung des Betriebsdrucks ergibt sich für den Aufsprühbereich eine korrigierte Leidenfrosttemperatur von $T_L = 290^\circ\text{C}$. Analog lassen sich die in Abbildung 7.10 dargestellten lokalen Leidenfrosttemperaturen von $T_L = 317^\circ\text{C}$ im inneren Auftreffbereich und von $T_L = 263^\circ\text{C}$ im äußeren Auftreffbereich herleiten. Generell steigt die Leidenfrosttemperatur mit steigender Tropfengeschwindigkeit [163] bzw. Strömungsgeschwindigkeit [164]. Bei einer Änderung des Düsenabstands oder des Düsentyps muss dieser Effekt in der Modellierung berücksichtigt werden. Die Abhängigkeit der Tropfengeschwindigkeit vom eingespritzten Was-

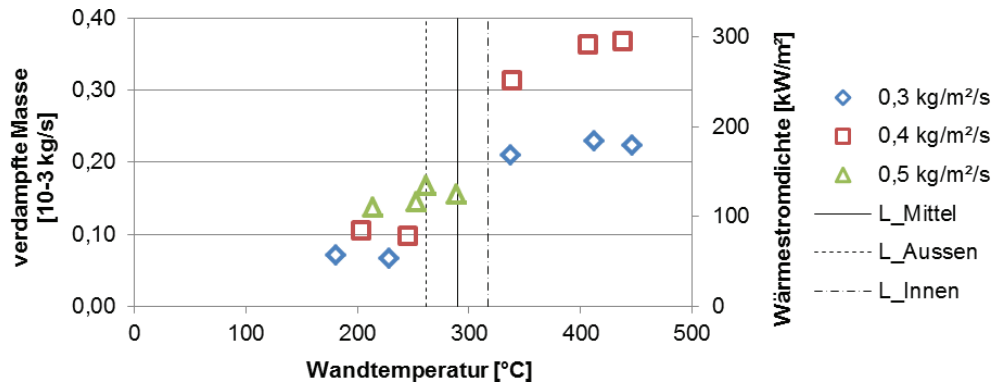


Abb. 7.10: Charakteristische Zusammenhänge des verdampften Massenstroms, der effektiven Oberflächentemperatur und der Wasserbeaufschlagungsdichte beim Sieden eines Tropfensprays auf einer Hemisphäre

sermassenstroms wird im Folgenden vernachlässigt. Weitere Einflussfaktoren auf die Lage des Leidenfrostpunktes sind die Oberflächenbeschaffenheit und die Temperatur der auftreffenden Tropfen. Oberhalb des Leidenfrostpunktes wird das Strömungsverhalten ebenfalls durch den geänderten Auftreffwinkel beeinflusst. In einem auf eine Hemisphäre aufgespritzten Tropfenspray ist im tangentialen Auftreffbereich der Impuls normal zur Fläche gleich Null. Generell sinkt die Flächen-normale Weberzahl mit dem Auftreffwinkel, wodurch sich das Strömungsverhalten in den Bereich der Reflektion ohne Auswurf von Sekundärtropfen verschiebt [165]. Die aus dem Geschwindigkeitsprofil in der wandnahen Grenzschicht resultierenden Auftriebskräfte verstärken diesen Effekt. Ab einem Auftreffwinkel von 3° findet kein Tropfen-Wand Kontakt mehr statt [162]. Die auf dem Aufprall beruhenden Direktkontakteffekte sind im Randbereich vernachlässigbar. Aus Abbildung 7.9 und entsprechenden CFD-Simulationen wird für eine hemisphärische Aufsprühfläche im äußeren Auftreffbereich ein Reflektionsanteil von 66 % abgeschätzt. Unter den hergeleiteten Annahmen ergibt sich das in Abbildung 7.10 gezeigte, an eine hemisphärische Prallfläche angepasste Modell. Die für die Betriebsparameter im Brenngaserzeugungssystem relevanten Bereiche sind, unter Berücksichtigung der diskutierten Einflussfaktoren, grau hinterlegt. Durch eine Aufteilung der Auftrefffläche in unterschiedliche Wechselwirkungszonen lässt sich die Geometrieabhängigkeit der Wärmeübertragung ortsaufgelöst darstellen. Bei einer Aufteilung in einen inneren Bereich mit hoher Wasserbeaufschlagungsdichte und einem äußeren Bereich mit niedriger Wasserbeaufschlagungsdichte lässt sich das Modell anhand der dargestellten Leidenfrosttemperaturen anpassen.

Analog zur Modellierungsmethode für eine ebene Platte lassen sich anhand Abbildung 7.10 die experimentellen Ergebnisse in die CFD-Simulation der Wärmeübertragung an hemisphärischen Prallflächen oder Klöpperböden übertragen.

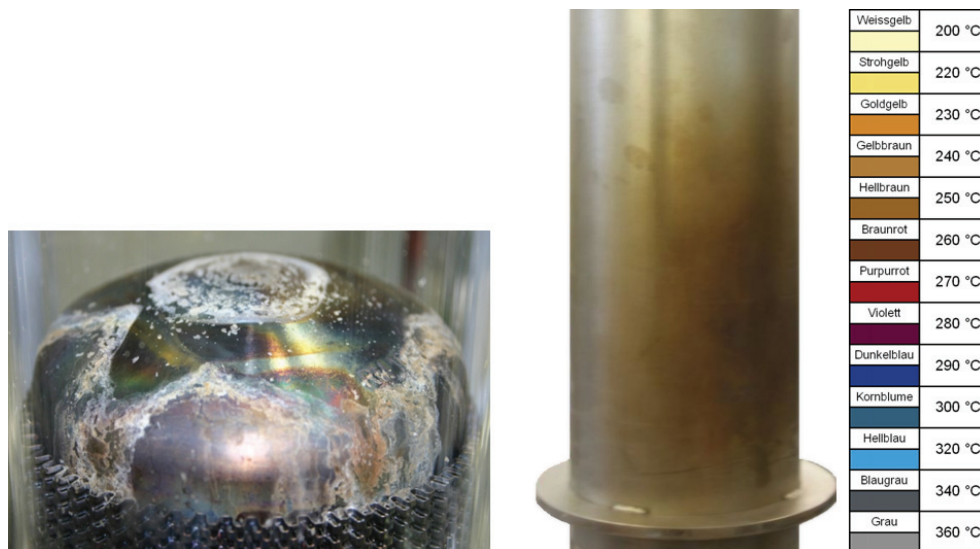


Abb. 7.11: Post-mortem Analyse der Aufsprühfläche (links) und der Aussenhülle eines CAB 2.1 nach Betrieb (rechts), charakteristische Anlassfarben für Stahl [166]

7.1.5 Auslegung des integrierten Wärmetauschers im katalytischen Brenner CAB 3

Bei der Auslegung des katalytischen Brenners CAB 2 in der Leistungsklasse 5 kW_{el} wurden CFD-Simulationen zur Untersuchung des Wärmeübertragungsverhaltens durchgeführt [84]. Hierbei waren, wie in den vorangegangenen Abschnitten beschrieben, lediglich *worst-case* Abschätzungen auf Basis der FLUENT Wechselwirkungsmodelle möglich. Anhand der Simulationen wurden zwei Designmodifikationen auf Basis des in Abbildung 2.12 gezeigten Designkonzepts entwickelt. Im katalytischen Brenner CAB 2.1 sind sowohl die Prallfläche, als auch die Außenhülle im Bereich der Eindüsung, als Klöpperboden ausgeführt. In den katalytischen Brennern CAB 2.2 und CAB 2.3 sind die Prallflächen hemisphärisch, wobei die Außenhülle im CAB 2.3 zusätzlich die Form eines Flaschenhalses hat. Ziel der Modifikationen ist die Vergrößerung der Wärmetauscherfläche sowie die Optimierung des Tropfentransports in den sich anschließenden Ringspaltwärmetauscher.

Der katalytische Brenner CAB 3 in der Leistungsklasse 10 kW_{el} basiert auf dem Design des CAB 2. Zur Wahl der optimalen Designvariante wurden während der Entwicklung die in Abbildung 7.9 dargestellten Visualisierungsexperimente, Prototypentests und *post-mortem* Analysen durchgeführt. Abbildung 7.11 zeigt auf der linken Seite die Aufsprühfläche in der Glasvariante des katalytischen Brenners CAB 2.1. Die Ablagerungen auf der Wärmetauscherfläche resultieren aus Unreinheiten in der VE-Wasserversorgung. Die Verunreinigungen lagern sich primär bei der intensiven Verdampfung an den Dreiphasengrenzen zwischen Dampf, Wasser und Metall ab. Somit folgen die Ablagerungen den Rändern eines Wasserfilms, welcher sich im Betrieb

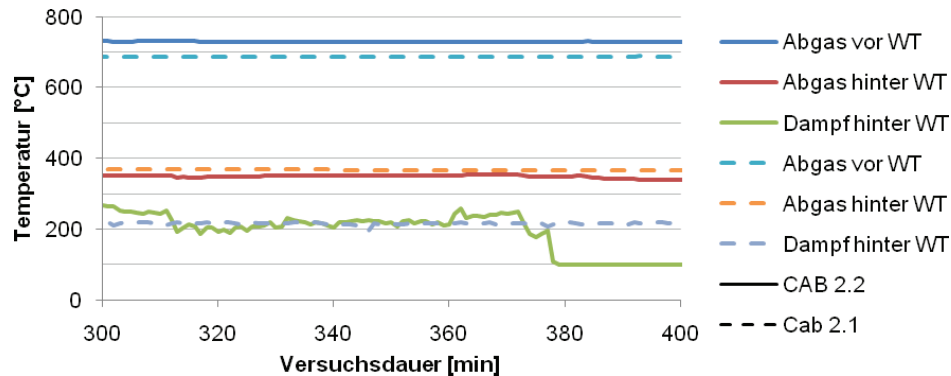


Abb. 7.12: Temperaturverläufe an charakteristischen Punkten im CAB 2.1 und im CAB 2.2

auf dem Klöpperboden gebildet hat. Der Wasserfilm ist nicht gleichmäßig über die Oberfläche abgeflossen. Vielmehr haben sich einige wenige Hauptströmungen gebildet, in denen der Film mit einer Dicke im mm-Maßstab abgeflossen ist. Der nachfolgende Ringspaltwärmetauscher wurde somit nur lokal mit einer großen Menge an Wasser beaufschlagt. Dies erschwert lokal die vollständige Verdampfung des Wasserfilms und verringert gleichzeitig die effektiv genutzte Wärmeübertragungsfläche. Wie Abbildung 7.9 zeigt, bilden sich im Betrieb an der Aussenhülle des Reaktors Tropfen, welche im weiteren Verlauf in den Ringspalt abfließen. Eine ungleichmäßige Beaufschlagung der Außenhülle führt ebenfalls zu Inhomogenitäten über den Ringspaltumfang. Anhand der Anlassfarben lässt sich ein lokaler Hot-Spot auf der Aussenhülle des Prototypen CAB 2.1 erkennen. Die Wandtemperatur lag hier im Bereich von 260 °C. Die restliche Wand weist keine signifikanten Verfärbungen auf. Die dargestellte Farbtabelle [166] gilt für unlegierten Werkzeugstahl. Es ist zu vermuten, dass die Maximaltemperatur im verwendeten hochlegierten Edelstahl über den ermittelten 260 °C lag.

Abbildung 7.12 zeigt die Ergebnisse von Prototypentests mit den Reaktoren CAB 2.1 und CAB 2.2. Dargestellt sind die charakteristischen Temperaturen bei 100 % Last, einem maximalen Wassermassenstrom von 70 % des Dampfbedarfs des ATR und einer Luftzahl im Anodenabgas von $\lambda = 1,6$. Die Abgastemperatur direkt am Monolithaustritt liegt im Reaktor der Variante 2.2 mit 728 °C etwa 40 K über der entsprechenden Temperatur im CAB 2.1. Im Wärmeübertrager der Variante 2.2 wird das heiße Abgas um 385 K auf 343 °C am Austritt abgekühlt. Der Wasserdampf wird dabei auf etwa 154 °C am Austritt des Reaktors überhitzt. Im CAB 2.1 liegt die Abgastemperatur am Austritt, trotz der geringeren Maximaltemperatur, etwa 36 K über der entsprechenden Temperatur im CAB 2.2. Es wird eine geringere Wärmemenge übertragen, so dass der Dampf nur auf 114 °C überhitzt wird. Die Wärmeübertragungseffizienz im CAB 2.1 liegt bei 81 % und im CAB 2.2 bei 87 % der bis zum thermischen Ausgleich übertragbaren Wärmemenge. Ob die verbesserte Wärmeübertragung im CAB 2.2 auf die modifizierte Außenwandgeometrie zurückzuführen ist, lässt sich anhand des Prototypentests nicht endgültig klären. Am Austritt des Wärmeübertragers der Designvariante 2.2 weist der Temperaturverlauf des überhitzten Dampfs in unregelmäßigen Abständen sprunghafte Anstiege und

Einbrüche um bis zu 80 K auf. Diese Effekte sind auf ein instationäres Strömungs- und Siedeverhalten auf dem Klöpperboden zurückzuführen. Aufgrund der relativ ebenen Aufsprühfläche des Klöpperbodens kann sich hier ein ruhender Wasserfilm mit einer Dicke im mm-Maßstab ausbilden. Der Ringspalt wird in diesem Zustand mit einem geringeren Wassermassenstrom beaufschlagt, so dass es zu einer stärkeren Überhitzung des Dampfes kommt. Beim Überschreiten einer kritischen Dicke oder Ausbreitung fließt der Filme schwallartig nahezu vollständig über die in Abbildung 7.11 gezeigten Hauptströme ab. Die Tropfen können hierbei ungehindert durch die kanalförmigen Turbulenzstrukturen im Ringspalt abfließen, so dass eine vollständige Verdampfung nicht gewährleistet ist. Die erhöhte Wasserbeaufschlagungsdichte im Ringspalt führt hier zu einer geringeren Überhitzung. Bei einer Versuchsdauer von etwa 380 Minuten fällt die Dampftemperatur auf die Siedetemperatur von 100 °C. Die Aufrechterhaltung dieses Zustands über 20 min ist ein Indiz dafür, dass hier der untere Teil des Ringspalts mit Wasser vollgelaufen ist. Entsprechend weist der Temperaturverlauf zwischen 360 min und 380 min auf eine Filmbildung auf dem Klöpperboden hin. Die Temperaturverläufe im CAB 2.1 zeigen ein stationäres Verhalten. Durch die *post-mortem* Analyse in Abbildung 7.11 konnte auch für diesen Reaktor ein zeitweises inhomogenes Strömungsverhalten nachgewiesen werden.

In den Prototypentests der katalytischen Brennergeneration CAB 2 konnte die grundsätzliche Funktionsfähigkeit der integrierten Verdampfer nachgewiesen werden. Im darauf basierenden *scale-up* des CAB 3 sollen die beobachteten inhomogenen und instationären Strömungseffekte auf der Aufsprühfläche und im Ringspalt konstruktiv unterbunden werden. Eine weitere Anforderung zeigt sich bei der Untersuchung der Lageabhängigkeit des Strömungsverhaltens. Abbildung 7.13 zeigt das Abfließverhalten eines aufgesprühten Wasserfilms für unterschiedliche Oberflächengeometrien bei einer Reaktorauslenkung um 30 ° aus der vertikalen Achse. Der untersuchte Winkel von 30 ° entspricht hierbei der maximalen Auslenkung eines Flugzeugs beim Auf- bzw Absteigen sowie im Kurvenflug [167]. Die dargestellten Simulationsergebnisse wurden mit Hilfe des VOF-Modells berechnet. Bei einer ebenen Prallfläche fließt der Film in dicken Strömen ab, wobei nur etwa ein Viertel des folgenden Ringspaltwärmetauschers mit Wasser beaufschlagt wird. Bei einem Klöpperboden fließt das Wasser in Tropfenbahnen ab, wobei etwa die Hälfte des folgenden Ringspalts mit Wasser versorgt wird. Bei einer hemisphärischen Prallfläche wird der gesamte Umfang mit Tropfen beaufschlagt.

Anhand der durchgeführten Analysen wurde der katalytische Brenner CAB 3 auf Basis der Designvariante 2.3 entwickelt. Der hemisphärische Klöpperboden ermöglicht hier ein schnelles und gleichmäßiges Abfließen des Wasserfilms und bietet gleichzeitig die größte Lageunabhängigkeit. Mit dieser Variation kann eine homogene und stationäre Versorgung des Ringspaltwärmetauschers über dem gesamten Anströmquerschnitt erzielt werden. Die Aufsprühfläche wird durch die hemisphärische Form erhöht. Die Düse ist hierzu so angeordnet, dass der äußere Rand des Sprühkegels die Hemisphäre nahezu tangential trifft. Um den Transport der nicht verdampften Tropfen in den Ringspalt zu optimieren, verläuft die Aussenhülle parallel zur Sprühkegelgeometrie. Beide Ringspalten sind mit einem Drahtgestrick gefüllt. Hierdurch wird die Wärmeübertragungsfläche zwischen Wand und Fluid vergrößert. Zusätzlich sollen Wasser-Tropfen und -Ströme im Gestrick zurückgehalten werden, um so eine vollständige Verdampfung sicherzustellen.

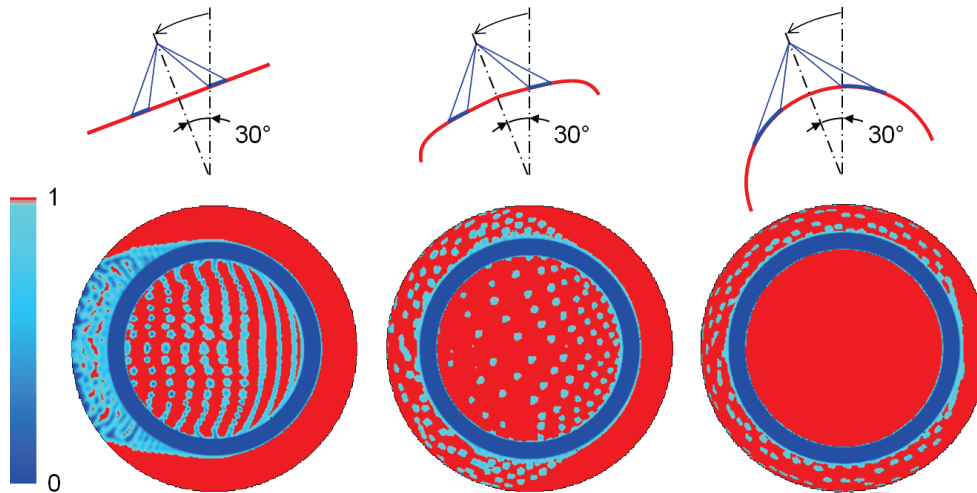


Abb. 7.13: Abfließen des Wasserfilms bei 30 ° Auslenkung für unterschiedliche Oberflächengeometrien, Farben nach Phasenanteil Dampf im VOF-Modell [168]

Abbildung 7.14 zeigt das Simulationsergebnis des CAB 3 in einem Gesamtmodell. Der dargestellte Betriebspunkt entspricht dem *scale-up* des für den CAB 2 diskutierten Betriebs mit maximalem Wassermassenstrom. Die chemischen Reaktionen im Monolithen wurden mit den in Kapitel 6 modifizierten Parametern der in Tabelle 6.4 dargestellten Arrhenius-Zusammenhänge für die H_2 -, CO -, und CH_4 -Oxidation berechnet. Die am Monolithaustritt berechnete Temperatur von 691 °C liegt im Bereich der experimentell ermittelten Werte aus Abbildung 7.12. Um den Wärmeübertrag an der Aufsprühfläche zu maximieren, wurde das Hüllrohr des Monolithen, der hemisphärischen Form folgend, bis unter die Aufsprühfläche verlängert. Hierdurch wird an dieser Stelle lokal die Strömungsgeschwindigkeit und somit auch der Wärmeübergangskoeffizient erhöht. Das heiße Abgas besitzt an dieser Stelle eine thermische Leistung von 13,3 kW und eine Strömungsgeschwindigkeit von etwa 35 m/s. Das Wärmeübergangsverhalten an der Aufsprühfläche wurde mit der hergeleiteten geometriesensiblen Modellierungsmethodik berechnet. Die Wasserbeaufschlagungsdichte über die gesamte Auftrefffläche liegt bei 0,17 kg/m²/s. Aufgrund der hemisphärischen Oberflächenform ergibt sich ein Verlauf der lokalen Wasserbeaufschlagungsdichte von etwa 0,3 kg/m²/s am inneren Auftreffrand bis zu 0 kg/m²/s im tangentialen Bereich. Der iterative Modellierungsprozess ergab im Auftreffbereich eine Oberflächentemperatur von 200 °C bis 300 °C und eine übertragene Wärmestromdichte in der Größenordnung von 100 kW/m². Gemäß Abbildung 7.10 resultiert hieraus die Bildung eines Wasserfilms auf der Auftrefffläche mit einem lokalen Verdampfungsmassenstrom von etwa $1 \cdot 10^{-4}$ kg/s. Inhomogenitäten im Temperaturverlauf ergeben sich aus dem Verlauf der lokalen Wasserbeaufschlagungsdichte. Im Bereich der tangentialen Auftrefffläche werden höhere Oberflächentemperaturen bis zu 400 °C erreicht. Die CFD-Simulation sagt somit die Bildung eines Wasserfilms in den inneren Bereichen der Auftrefffläche voraus. Dieses Ergebnis deckt

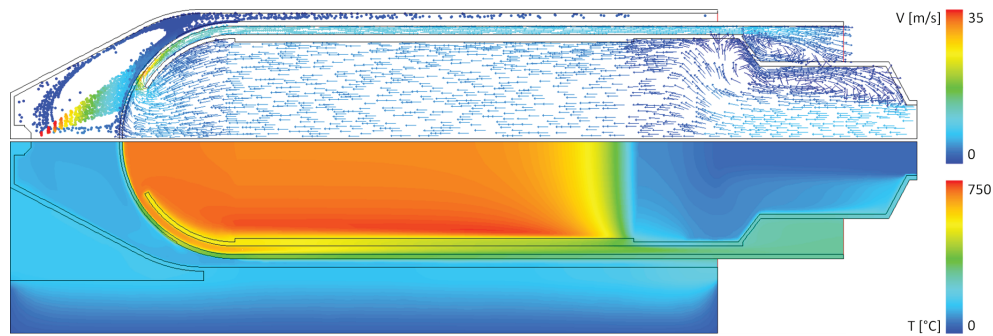


Abb. 7.14: Modellierter Temperaturverlauf in [°C] sowie Strömungsbild und Sprühbild in [m/s] im CAB 3

sich mit den Visualisierungsexperimenten und den Prototypentests am CAB 2. Die nicht verdampften Tropfen werden über zusätzliche *injections* zu 10 % analog zur Reflektion und zu 90 % als abfließender Wasserfilm eingeführt. Wie Abbildung 7.14 zeigt, verdampfen die Wassertropfen vollständig im Ringspalt. Die Austrittstemperatur des überhitzten Dampfes liegt dabei bei 242 °C, die des Abgases bei 292 °C. Im Vergleich zu Abbildung 7.12 zeigt die Simulation des CAB 3 eine intensivere Wärmeübertragung mit einer Übertragungseffizienz von 96 %. Dies resultiert aus einer verbesserten Wärmeübertragung an der hemisphärischen Aufprallfläche sowie aus der Wärmeleitung und der vergrößerten Wärmetauscherfläche durch die Drahtgestricke in den Ringspalten. Das Drahtgestrick wurde analog zum Monolithen als poröser Körper modelliert. Hierbei zeigt sich eine starke Abhängigkeit des Wärmeübertragungsverhaltens im Ringspalt von der Wärmeleitung im porösen Körper. Um den Effekt der Wegverlängerung der Wärmeleitung im Drahtgestrick zu berücksichtigen, wurde die Wärmeleitfähigkeit, auf Basis einer optischen Analyse, mit $\lambda_{porös} = 1/3 \cdot \lambda_{Stahl}$ abgeschätzt. Für eine Wärmeleitfähigkeit von $\lambda_{porös} = \lambda_{Stahl}$ kommt es zum nahezu vollständigen thermischen Ausgleich zwischen den beiden Fluiden. In der dargestellten Modellierung wurde die Agglomeration von Wassertropfen nicht berücksichtigt. Bei einer Berechnung mit einem *collision* Modell bildeten sich Wassertropfen mit einem Durchmesser von bis zu 0,5 mm. Diese Tropfen verließen den Reaktor ohne vollständig zu verdampfen. Aufgrund der Annahme eines porösen Körpers wurde in dieser Berechnung die Ablagerung von Tropfen auf dem eingebrachten Drahtgestrick nicht berücksichtigt.

7.2 Modellierung des Wärmeübergangs in dispersen Nassdampfströmungen

7.2.1 Nassdampfströmungen mit überkritischem Dampfanteil

Das im vorangegangenen Kapitel hergeleitete Modell basiert auf dem Ansatz einer durch den kurzzeitigen Direktkontakt beim Aufprall dominierten Wärmeübertragung zwischen Tropfen

und Wand. In einer homogenen Nassdampfströmung besitzen die einzelnen Tropfen keinen starken Impuls normal zur Wärmetauscherfläche. Die kinetischen Effekte beim Tropfenprall sind vernachlässigbar. Wie Abbildung 7.8 zeigt, sind die FLUENT Standardmodelle *wall-jet*, *wall-film*, und *reflect* zur Berechnung der übertragbaren Wärmestromdichte geeignet. In einer dispersen Nassdampfströmung oberhalb des kritischen Dampfanteils lässt sich das System ohne zusätzliche implementierte Wandfunktionen durch einen Euler-Ansatz beschreiben. Die Wärmeübertragung in der in Abbildung 2.19 gezeigten Sprühströmung erfolgt über die kontinuierliche Phase. Hierzu eignet sich in FLUENT das auf dem mixture-Modell basierende Nassdampfmodell. Der Gültigkeitsbereich dieses Modells liegt bei Dampfanteilen oberhalb von 90 % [72]. Typische kritische Wärmestromdichten in den Nassdampfströmungen des Brenngaserzeugungssystems liegen im Größenbereich oberhalb von etwa 85 %. Somit bietet die Standard-Modellbibliothek ausreichende Modelle zur Beschreibung einer dispersen Nassdampfströmung.

7.2.2 Vereinfachte 2D Modellierung

Die integrierten Wärmetauscher der autothermen Reformer ATR 5 bis ATR 10 basieren auf einem Rohrwendelkonzept. Die Rohrwendeln sind hierbei aus Rohren mit einer Wandstärke von einem Millimeter gefertigt. Zur genauen Darstellung der Wärmeleitung im Rohr ist eine Netzfeinheit mit mindestens 3 finite Elemente über die Rohrdicke erforderlich [74]. Die genaue Modellierung der Wärmeübertragung zwischen dem strömendem Fluid im Rohr und der Rohrwand erfordert die Auflösung der wandnahen Grenzschicht mit einer ersten Schichtdicke unterhalb von y^+ . Die geforderte Feinheit führt zu einem Netz mit ungefähr 1 Million Volumenelementen pro Meter Rohrwendel. Somit sind zur alleinigen Vernetzung der Wärmetauscher im ATR 9.2 etwa 3 Millionen finite Volumen (FV) und im ATR 10 etwa 28 Millionen FV erforderlich. Um den Simulationsaufwand im Rahmen der Reaktorkonstruktion zu verringern, wurde eine vereinfachte 2D-Modellierungsmethodik entwickelt und optimiert. Aufgrund der geringeren Modellgenauigkeit eignet sich diese Methodik vor allem zur Konzeptvalidierung und -optimierung. In einem achsensymmetrischen 2D-Modell einer Rohrwendel werden die einzelnen Windungen als voneinander getrennte Rohrringe abgebildet. Die Nassdampfströmung durch die Rohrwendel lässt sich somit in einem 2D-Modell nicht kontinuierlich modellieren. Als vereinfachender Modellierungsansatz kann der Nassdampf über die Wandrandbedingungen an der Rohrwendelinnenseite berücksichtigt werden. Somit wird die Nassdampfströmung nicht direkt modelliert, sondern lediglich der Wärmeübergangskoeffizient und die Temperatur der Strömung angegeben. Durch das in Abbildung 7.15 dargestellte iterative Verfahren kann somit das Wärmeübertragungsverhalten und der Temperaturverlauf in der gesamten Rohrwendel berechnet werden.

Die Simulationsrechnung wird in den einzelnen Windungen, mit Schätzwerten für den Wärmeübergangskoeffizienten α_i und die Fluidtemperatur ϑ_i initialisiert. Mit diesen Werten kann im folgenden CFD-Simulationsschritt die jeweils in die Windung übertragene Wärmemenge Q_i berechnet werden. Im Bereich der Nassdampfströmung wird der Verdampfungsmassenstrom $\delta \dot{m}_i$ in der Rohrwindung W_i aus der übertragenen Wärme berechnet. Aus diesem $\Delta \dot{m}$ ergibt sich der Dampfanteil in der folgenden Windung W_{i+1} . Die Temperatur der freien Strömung

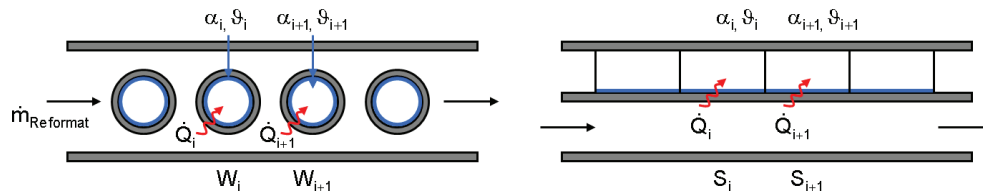


Abb. 7.15: Iterative Methodik der vereinfachten 2D Modellierung von Rohrwendel- (links) und Ringspaltwärmetauschern (rechts)

ist gleich der Siedetemperatur. Der Wärmeübergangskoeffizient wird nach Gleichung (2.21) in Abhängigkeit des Dampfanteils der Nassdampfströmung berechnet. Wie Abbildung 2.21 zeigt, muss hierbei die Rohrwendelgeometrie berücksichtigt werden. Nach der vollständigen Verdampfung des Nassdampfes wird der entstandene Wasserdampf überhitzt. In der Windung W_i wird aus dem ermittelten Wärmestrom und der temperaturabhängigen spezifischen Wärmekapazität die Temperaturdifferenz berechnet und an die Windung W_{i+1} übergeben. In einem iterativen Verfahren werden die beschriebenen Schritte solange wiederholt, bis ein konvergiertes Ergebnis erreicht ist. Wie Abbildung 7.15 zeigt, lässt sich das vorgestellte Konzept auch auf einen Ringspaltwärmetauscher übertragen. Eine direkte Modellierung des Nassdampfes mit einem Euler/Euler, mixture- oder dpm-Modell ist ebenfalls möglich.

7.2.3 Experimentelle Modellvalidierung und Fehleranalyse

Die diskutierten modifizierten CFD-Modelle wurden anhand von Experimenten validiert. Hierzu standen Daten von Prototypentests des ATR 8-V2 zur Verfügung. Abbildung 7.16 zeigt die mit den modifizierten Modellen berechneten Temperaturprofile von Nassdampf und Reformat im ATR 8-V2. Der Fehlerbalken der simulierten Reformataustrittstemperatur resultiert aus dem Temperaturverlauf über den Rohrquerschnitt. Die im Experiment gemessene Temperatur ist somit abhängig von der Position des Thermoelements im Rohr. Die durchgeführten CFD-Simulationen zeigen eine starke Abhängigkeit von den gewählten Randbedingungen. In der gezeigten Simulation wurden an den Rändern des Simulationsgebietes Wärmesenken eingeführt, um die internen Wärmeströme im Reformer sowie den Wärmeverlust nach außen zu berücksichtigen. Die Wärmesenken wurden dabei anhand des im Experiment ebenfalls ermittelten Temperaturverlaufs am ATR-Druckmantel angepasst. Abbildung 7.16 zeigt das charakteristische Verhalten der Rohrwendelwärmetauscher der Reformergenerationen ATR 7 bis ATR 9. Der Nassdampf verdampft vollständig in den ersten Windungen des Gegenstromzweigs der Rohrwendel. Im weiteren Verlauf des Gegenstromzweiges kommt es zu einem starken thermischen Ausgleich zwischen den Fluiden. Nach der Umlenkung verlaufen die Temperaturprofile im Reformat und im Gleichstromzweig des Wärmetauschers nahezu deckungsgleich. Erst im Bereich der Verdampfung, in dem das Reformat einen starken Temperaturgradienten aufweist, weichen die Temperaturen voneinander ab. Hier kühlt das Reformat schneller ab, so dass die Dampftemperatur am Austritt über der Reformattemperatur liegt. Der nahezu deckungsgleiche Verlauf der Fluidtemperaturen über mehr als 10 Rohrwindungen zeigt, dass der Wärmetau-

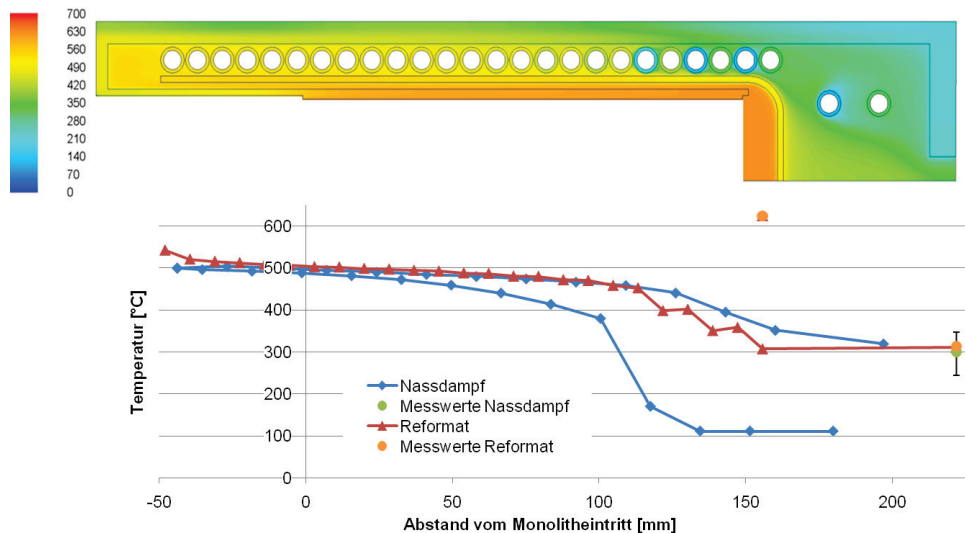


Abb. 7.16: Vergleich der modellierten und der experimentell ermittelten Temperaturverläufe im Wärmetauscher des ATR 8-V2, Farbverlauf: Temperatur in [°C]

scher überdimensioniert ist. Gleichzeitig führt dieser charakteristische Temperaturverlauf zu einem stabilen Wärmeübertragungsverhalten bei Änderungen der Eintritts- und Randbedingungen. Wie Abbildung 1 zeigt, sind die modifizierten Modelle zur weiteren Auslegung der ATR Wärmetauscher geeignet. Für eine hohe Simulationsgenauigkeit ist hierbei jedoch die Abbildung der internen und externen Wärmeverlustströme grundlegend. Dies erfordert die Simulation der Wärmetauscher in einem ATR-Gesamtmodell und die direkte Modellierung der Wärmeströme bis hin zur freien Luftströmung der Umgebung. Die Ungenauigkeit der in der Modellierung verwendeten empirischen Zusammenhänge aus [50] liegt bei 15 %. Ein systematischer Fehler kann in der Modellierung durch die Vernachlässigung einer Siedekrise entstehen. Am Fallbeispiel des ATR 10 wurde hierbei eine Verschiebung des Punktes der vollständigen Verdampfung um bis zu eine Rohrwindungslänge ermittelt. Aufgrund des charakteristischen Wärmeübertragungsverhaltens der Rohrwendelwärmetauscher im ATR 7 bis ATR 10 wirkt sich diese Ungenauigkeit jedoch nicht signifikant auf die Austrittstemperaturen der Fluide aus.

7.2.4 Auslegung des Rohrwendel-Wärmetauschers im autothermen Reformer ATR 10

Der autotherme Reformer ATR 10 wurde, wie Tabelle 4.1 zeigt, für ein Brenngaserzeugungssystem der Leistungsklasse 50 kW_{el} konstruiert. Die Reaktionszone des Reaktors setzt sich aus zwei Monolithen mit einem Durchmesser von 4,66 " und einer Gesamtlänge von 300 mm zusammen. Für einen analog zum ATR 9 gestalteten Rohrwendelwärmeübertrager ergibt sich

7.2. Modellierung des Wärmeübergangs in dispersen Nassdampfströmungen

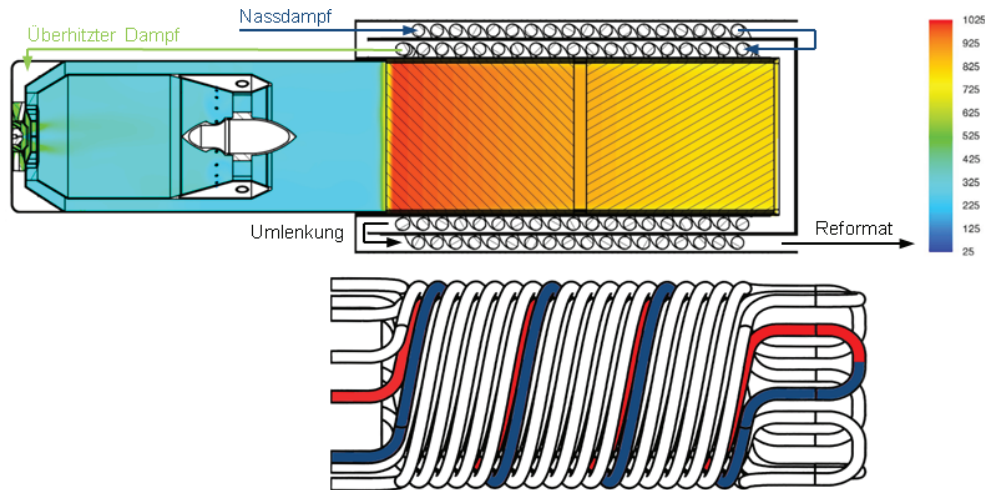


Abb. 7.17: Konzept des Rohrwendelwärmetauschers im ATR 10 mit einem Rohrwendelbündel aus 6 einzelnen Wendeln

für die fünffache Last nur eine etwa dreimal so große Wärmetauscherfläche. Eine Ausführung mit einer einzelnen Rohrwendel führt zu hohen Druckverlusten bzw. großen Rohrdurchmessern und somit großem Reaktorvolumen. Um den Druckverlust im Wärmetauscher bei einem Rohrdurchmesser von 10x1 mm gering zu halten, wurde der in Abbildung 7.17 dargestellte Wärmeübertrager aus sechs ineinander gedrehten Rohrwendeln konstruiert. Die Nassdampfzuleitung liegt, im Gegensatz zum ATR 9, auf der Seite der Kerosineinspritzung. Das Rohrwendelbündel verläuft im blauen Zweig im Gleichstrom durch den äußeren Ringspalt. Im Bereich des Reformataustritts wird das Rohrwendelbündel umgelenkt und verläuft im roten Zweig ebenfalls im Gleichstrom durch den inneren Ringspalt. Somit besteht der Wärmeübertrager aus zwei Gleichstromwärmetauschern die im Gegenstrom angeordnet sind. Aus- und Eintritt von Dampf und Reformat liegen dabei auf entgegengesetzten Seiten.

Das Grundkonzept des Wärmeübertragers wurde in einer vereinfachten adiabaten 2D-Simulation validiert. Hierzu wurde vereinfachend von einer konstanten Monolithtemperatur von 700 °C ausgegangen, die gleich der Reformattertemperatur hinter dem Monolithen ist. Abbildung 7.18 zeigt den simulierten Temperaturverlauf im Wärmetauscher. Der mit einem Dampfgehalt von 50 % eingeleitete Nassdampf ist bei etwa 200 mm vollständig verdampft und wird im weiteren Verlauf der äußeren Rohrwendel auf etwa 180 °C überhitzt. Im inneren Rohrwendelbündel wird der Dampf weiter überhitzt und erreicht am Ende des Wärmetauschers eine Temperatur von 480 °C. Die Temperaturdifferenz im inneren Gleichstromwärmetauscher nimmt dabei von über 500 K auf unter 100 K ab. Im äußeren Ringspalt wird das Reformat durch die Verdampfung stark abgekühlt und erreicht eine Austrittstemperatur von etwa 360 °C. Somit liegen die simulierten Austrittstemperaturen im Bereich der Auslegungswerte von 480 °C für den überhitzten Dampf und von 400 °C für das Reformat. Um das Verhalten des Wärmeübertra-

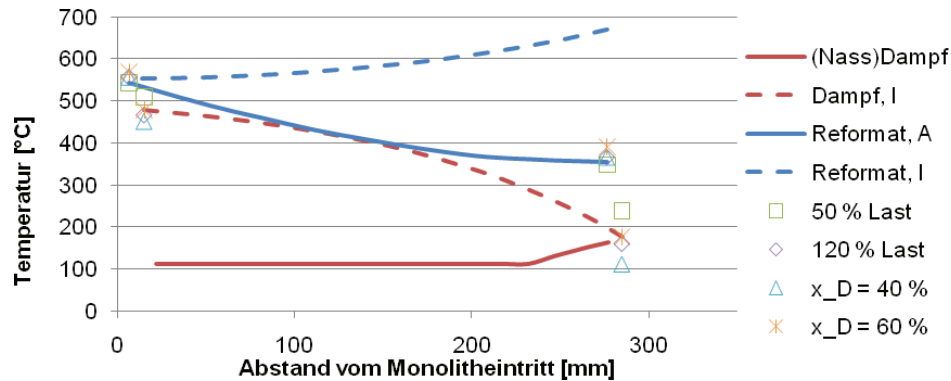


Abb. 7.18: Temperaturverläufe im modellierten ATR 10-Wärmetauscher bei 100 % Last und 50 % Dampfgehalt (durchgezogene Linie: äußerer Ringspalt, gestrichelte Linie: innerer Ringspalt) sowie Verhalten der charakteristischen Temperaturen bei Variation der Betriebsparameter (leere Symbole)

gers bei Änderungen des Betriebszustandes zu untersuchen, wurden in einer Parameteranalyse die Last und der Eintrittsdampfgehalt variiert. In Abbildung 7.18 sind die charakteristischen Temperaturen für die Betriebspunkte 50 % Last, 120 % Last, 40 % Eintrittsdampfgehalt und 60 % Eintrittsdampfgehalt bei ansonsten unveränderten Parametern dargestellt. Die höchsten Temperaturunterschiede sind hier für Nassdampf im Bereich der Rohrwendelumlenkung zu beobachten. Dieser Effekt ist auf eine Verschiebung des Punktes der vollständigen Verdampfung zurückzuführen. Mit sinkendem Dampfanteil oder steigender Last verringert sich die Dampfaustrittstemperatur. Dies resultiert aus einer größeren zur Verdampfung benötigten Wärmemenge bzw. aus der geringeren Verweilzeit der Fluide im Wärmetauscher. Entsprechend steigt die Temperatur des überhitzten Dampfes mit steigendem Dampfanteil oder sinkender Last. Die Simulationsrechnungen zeigen keine Abhängigkeit der Reformataustrittstemperatur von der Last. Die Erhöhung des Dampfanteils auf 60 % führt zu einer Zunahme der Reformattemperatur um etwa 40 K. Die ermittelte geringere Abkühlung des Reformats entspricht der geringeren zur Verdampfung benötigten Wärmemenge. Für den Fall eines Eintrittsdampfgehaltes von 40 % ist in der Simulation jedoch keine Abnahme der Reformattemperatur zu beobachten. Diese Abweichung liefert in einer einfachen Fehlerabschätzung eine Modellierungsgenauigkeit von etwa 10 %. Generell eignet sich die vereinfachte adiabate Modellierung des Wärmetauschers nur zur Konzeptvalidierung und zur Abschätzung von allgemeinen Verhaltenstendenzen. Ungenauigkeiten entstehen durch die Vernachlässigung der internen Wärmeströme. Insbesondere die Reformattemperatur hinter dem Monolithen wird direkt durch die Chemie und der Dampftemperatur beeinflusst.

Nach der Konzeptvalidierung des Rohrwendelwärmetauschers im ATR 10 wurde im Rahmen der Konstruktion eine *worst-case* Analyse im Bezug auf die Temperatur im Druckmantel durchgeführt. Die maximale Temperatur im Druckmantel ist hierbei grundlegend für die Werkstoffwahl und das Dämmkonzept. Insgesamt wurden vier Dämmkonzepte untersucht. Abbildung 7.19

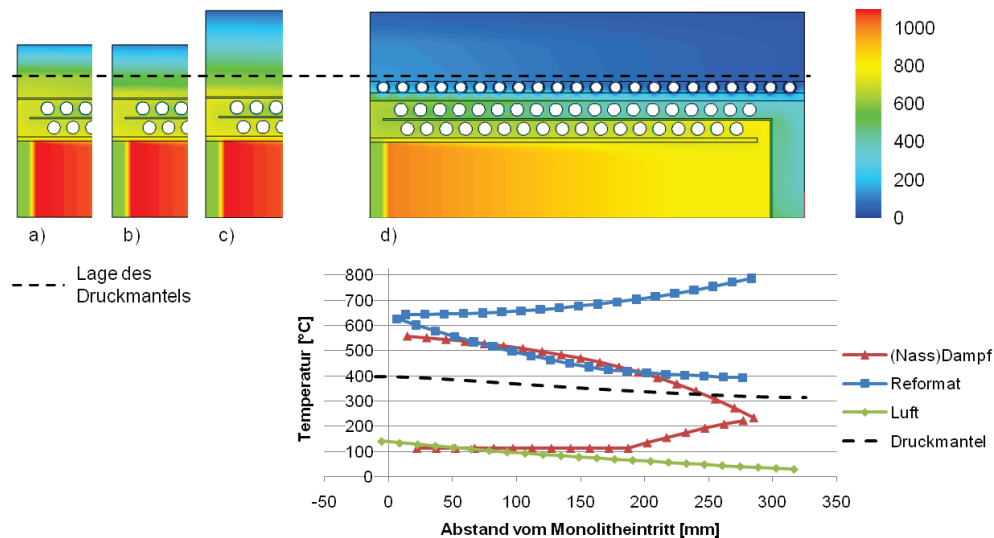


Abb. 7.19: Temperaturprofil im ATR 10 für unterschiedliche Dämmkonzepte sowie Temperaturverlauf im Konzept mit Luftvorwärmer, Farbverlauf: Temperatur in [°C]

zeigt die Temperaturprofile im ATR 10 für vier unterschiedliche Dämmkonzepte. Die Lage des Druckmantels im Reaktor ist durch eine gestrichelte Linie gekennzeichnet. Die maximale Temperatur des Druckmantels liegt im Bereich der zweiten Reformatumlenkung. Die dargestellten Dämmkonzepte a) bis c) unterscheiden sich durch die verwendeten Dämmstoffe und Schichtdicken. In der dargestellten *worst-case* Abschätzung wird eine maximale Reformattemperatur von 1100 °C und eine Reformattemperatur am Monolithaustritt von 900 °C angenommen. Diese Temperaturen entsprechen den maximal zulässigen Reformattemperaturen im Reformer. Für alle drei Konzepte liegt die maximale Manteltemperatur oberhalb von 600 °C. Dies erfordert in der Konstruktion die Verwendung eines teuren und schwer zuverarbeitenden Hochtemperaturwerkstoffs. Das vierte Dämmkonzept enthält eine Luftvorwärmung (LuVo) innerhalb des Druckmantels. Diese ist als zusätzliche Rohrwendel in die Wärmedämmschicht integriert. Die Abbildung zeigt den Temperaturverlauf des LuVo-Konzepts für eine Maximaltemperatur von 1000 °C. Im Luftvorwärmer wird der Luftstrom auf etwa 140 °C erhitzt. über die Rohrwendel findet keine starke Wärmeleitung in den äußeren Bereich der Dämmschicht statt. In den Zwischenräumen der Rohrwendel befindet sich ruhende Luft, welche stark dämmend wirkt. Durch dieses Konzept liegt die Maximaltemperatur im Druckmantel unter 200 °C. Dies erlaubt die Verwendung eines konventionellen Stahls als Material des Druckmantels. Die in die Luft übertragene Wärme sorgt in der Mischkammer für eine bessere Verdampfung des Kerosins. Durch den Luftvorwärmer geht somit keine Wärme aus dem System verloren. Lediglich der interne Wärmestrom in die Luftzuleitung wird verstärkt.

Abbildung 7.20 zeigt ein Gesamtmodell des ATR 10. Das Modell ist hierbei aus den 3D-Modellen der Mischkammer und der Luftzuleitung sowie dem 2D-Modell des Wärmetauschers

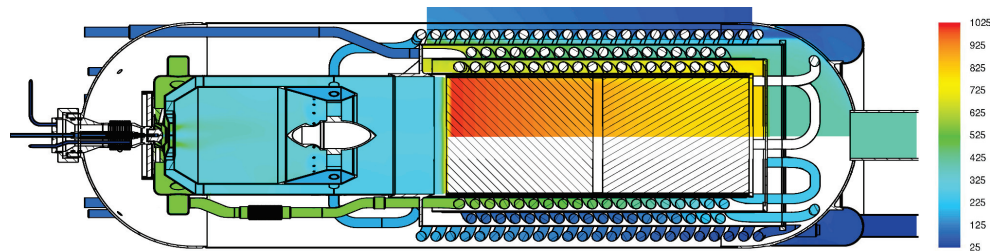


Abb. 7.20: Temperaturprofil im zusammengesetzten Gesamtmodell des ATR 10, Farbverlauf: Temperatur in [°C] [17]

zusammengesetzt. In den durchgeführten Modellierungen konnte das Wärmeübertragerkonzept validiert und um einen Luftvorwärmung erweitert werden. Für eine genaue Berechnung der internen Wärmeströme ist ein vollständiges Modell des ATR erforderlich. Dennoch konnten im Rahmen der Konstruktion wertvolle Erkenntnisse zum Wärmetauscherdesign und zur Werkstoffwahl erzielt werden.

7.3 Kombination der Modellierungsmethoden am Fallbeispiel ATR 11

Die integrierten Wärmetauscher der autothermen Reformer der Generationen 7, 8 und 9 bestehen aus einer einzelnen Rohrwendel, welche vom heißen Reformat umströmt wird. Hierbei befinden sich die Nassdampfzufuhr und der Austritt des überhitzten Dampfs auf derselben Seite des Reformers, so dass die Rohrwendel einen aufsteigenden Ast im Gegenstrom und einen absteigenden Ast im Gleichstrom besitzt. Der überhitzte Dampf wird außerhalb des Reformers weitergeleitet und tritt im Bereich der Kraftstoffeinspritzung in die Mischkammer ein. Durch die außenliegende Dampfleitung bietet sich in den Testständen die Möglichkeit die Temperatur des überhitzten Dampfs mittels Heizpatronen zu regeln. Diese Funktion ist jedoch im späteren System nicht vorgesehen. Im autothermen Reformer der Generation 11 soll, wie Tabelle 4.1 zeigt, der integrierte Wärmetauscher als reiner Gegenstrom-Rohrwendelwärmetauscher ausgeführt werden. Dies ermöglicht ein kompakteres Gesamtsystem der Brenngaserzeugung. Die Nassdampfzufuhr und der Austritt des überhitzten Dampfes liegen also auf entgegengesetzten Seiten. Der überhitzte Dampf wird direkt in die Mischkammer des Reformers geleitet, so dass keine externen Dampfleitungen notwendig sind. In der Konstruktion des ATR 11 trägt die Rohrwendel einen Teil der inneren Reformerkomponenten. Bei Betrieb einer einzelnen Rohrwendel würde die thermische Ausdehnung zu einem Verkanten der Komponenten führen. Um diesen Effekt zu verhindern, besteht der Wärmetauscher aus drei ineinander gedrehten Rohrwendeln. Ein Kippen der inneren Komponenten aufgrund thermischer Ausdehnungen des Rohrwendelbündels ist somit nicht möglich. Gleichzeitig führt dieses Design zu einem geringeren Druckverlust bei annähernd gleich bleibender Wärmetauscherfläche. Insgesamt ermöglicht die modifizierte Rohrwendel ein kompakteres und einfacheres Systemdesign, da die äußere Dampfleitung ent-

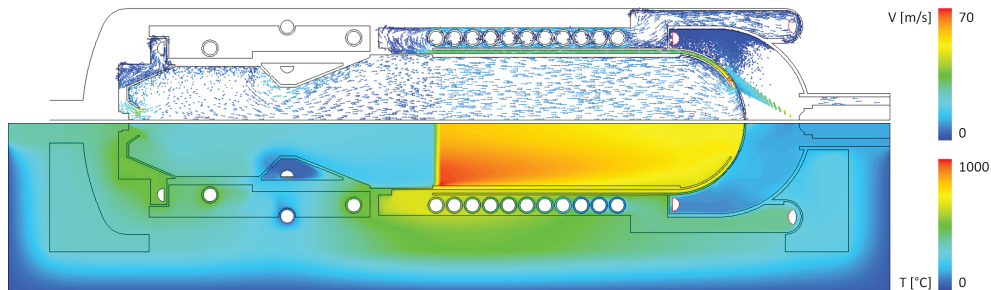


Abb. 7.21: Simulierter Temperaturverlauf sowie Strömungsbild und Sprühbild im ATR 11

fällt. Im Auslegungspunkt liegt am Eintritt in den Verdampfer des ATR, Nassdampf mit einem Dampfanteil von 50 % vor. Dieser wird in einer Nassdampfkammer aus dem überhitzten Dampf des integrierten Verdampfers des katalytischen Brenners und dem restlichen Wasser erzeugt. Um im Wärmetauscher eine gleichmäßige Verteilung des Nassdampfs auf die drei Rohrwindeln zu gewährleisten, wird die Nassdampfkammer in den Reformer integriert. Das Design verbindet hierbei, wie Abbildung 7.21 zeigt, Elemente der Nassdampfkammer des ATR 10 und des integrierten Wärmetauschers im katalytischen Brenner CAB 3. Die Umlenkplatte, welche das Reformat am Monolithaustritt in den Wärmetauscher leitet, wird als Hemisphäre ausgeführt. Analog zum katalytischen Brenner wird das Wasser mittels einer Dralldruckdüse auf die Hemisphäre aufgesprüht. Um den Wärmestrom an der Hemisphäre zu maximieren, wird das Monolithhüllrohr, dem hemisphärischen Verlauf folgend, bis unter die Auftrefffläche des Tropfensprays verlängert. Das eingesprühte Wasser wird in der Nassdampfkammer nicht vollständig verdampft. Um eine Ablagerung einzelner Tropfen auf der Düse zu verhindern, ist die Dampfzuführung bis in die Nassdampfkammer hinein verlängert. An der so entstandenen Kante sammeln sich einzelne Tropfen und agglomerieren. Gegebenenfalls entstehende Tropfen im mm-Maßstab fallen im Betrieb direkt auf den Bereich der maximalen Wärmestromdichte der Hemisphäre. Der entstandene Nassdampf strömt gleichmäßig in die drei Rohrwindeln des Wärmetauschers. In Höhe der ATR Mischkammer befindet sich aus konstruktiven Gründen eine zweite Windungszone, um thermische Dehnungen auszugleichen.

7.3.1 Modellierung der Wärmeübertrager in einem CFD-Gesamtmodell

Die durchgeführten CFD-Simulationen basieren auf der Kombination einer vereinfachten 2D-Beschreibung von Nassdampf in der Rohrwindel und der diskreten Modellierung des Tropfensprays in der Nassdampfkammer mithilfe des hergeleiteten Wärmeübertragungsmodells. Wie gezeigt konnten beide Methoden experimentell validiert werden. In der 2D-Simulation entspricht ein Rohr einer drittel Windung der drei ineinander gedrehten Rohre. Die gerade Zuleitungen der Luft und die Verbindung zwischen Rohrwindel und Mischkammer werden durch eine zusätzliche virtuelle Windung berücksichtigt. Die chemischen Reaktionen wurden

in den Modellen über die in Kapitel 6 hergeleiteten Quellterme für Species und Wärme in zwei Zonen eingebunden. Das Shift-Gleichgewicht wurde hierbei für den Auslegungspunkt des Reaktors berechnet. Änderungen des Shiftgleichgewichts, als Folge von Temperaturänderungen der Mischkammeredukte, wurden somit nicht berücksichtigt. Abbildung 7.21 zeigt, als Ergebnis der Simulationsrechnung, das berechnete Temperaturprofil sowie den Strömungsverlauf des Reformats und des Tropfensprays im ATR 11. Die gemittelte Reformattemperatur am Austritt des Monolithen liegt im Auslegungspunkt bei 717 °C. In der Umlenkung unterhalb der Auftrefffläche besitzt die Reformatströmung eine thermische Leistung von 12,5 kW und eine Strömungsgeschwindigkeit von etwa 70 m/s. Die thermische Leistung liegt somit in der selben Größenordnung wie im heißen Abgas des CAB 3, während die Strömungsgeschwindigkeit im Vergleich um den Faktor 2 größer ist. Das Wärmeübergangsverhalten an der Aufsprühfläche wurde mit der hergeleiteten geometriesensiblen Modellierungsmethodik berechnet. Die über die gesamte Auftrefffläche gemittelte Wasserbeaufschlagungsdichte liegt bei 0,1 kg/m²/s. Aufgrund der hemisphärischen Oberflächenform ergibt sich ein Verlauf der lokalen Wasserbeaufschlagungsdichte von etwa 0,2 kg/m²/s am inneren Auftreffrand bis gegen 0 kg/m²/s im tangentialen Bereich. Der iterative Modellierungsprozess ergab im Auftreffbereich für einen Verdampfungsmassenstrom von $1,5 \cdot 10^{-4}$ kg/s eine Oberflächentemperatur von 320 °C bis 415 °C und eine übertragene Wärmestromdichte zwischen 100 kW/m² und 180 kW/m². Gemäß Abbildung 7.10 resultiert hieraus das für Temperaturen oberhalb des Leidenfrostpunktes beschriebene Siedeverhalten. Im inneren Bereich der Auftrefffläche werden durch die erhöhte Wasserbeaufschlagungsdichte lokale Oberflächentemperaturen von etwa 200 °C erreicht, sodass es lokal zur Filmbildung kommen kann. Analog zur Reflektion wird der nicht verdampfte Wassermassenstrom in der Modellierung über der Auftrefffläche eingebracht. An der Außenwand der Nassdampfkammer wird, aufgrund der simulierten Oberflächentemperaturen unterhalb von 300 °C und der geringen kinetischen Energie der auftreffenden Wassertropfen, die Bildung eines Wasserfilms angenommen. Der überhitzte Dampf wird, analog zur Dampfeinleitung in die ATR Mischkammer, rotierend um die Wassereinspritzung zugeleitet. Somit bildet sich eine rotierende Dampfströmung die eine Rückströmung der Tropfen zur Düse verhindert. Die CFD-Simulationen ergeben, im Gegensatz zum diskutierten Fall des CAB 3 bei maximaler Wasserbeaufschlagungsdichte, einen durch die direkte Verdampfung dominierten Wärmeübertragungsmechanismus oberhalb des Leidenfrostpunktes. Dies ist auf die um den Faktor zwei höhere Strömungsgeschwindigkeit des Reformats, die um etwa 40 % geringere Wasserbeaufschlagungsdichte, die überlagerte Strömung des überhitzten Dampfs aus dem CAB und die um etwa 30 % höhere spezifische Wärmekapazität des Reformats zurückzuführen. Der entstandene Nassdampf strömt mit einem Dampfanteil von 74 % in den sich anschließenden Rohrwendelwärmetauscher. Die Strömung des Nassdampfs über die Bodenplatte der Nassdampfkammer in die Einlässe der drei Rohrwindeln wird in der durchgeführten 2D-Simulation nicht abgebildet. An dieser Stelle ist von einer zusätzlichen Verdampfung an der heißen Bodenplatte auszugehen, so dass im Betrieb mit einem höheren Eintrittsdampfgehalt in die Rohrwindeln zu rechnen ist. In dem ersten Drittel der Rohrwendelwindung liegt die über den Umfang gemittelte Wärmestromdichte bei 50 kW/m². In dem für die Austrocknung kritischen Scheitel- und Grundbereiche der Windungen liegt die Wärmestromdichte bei 20 kW/m² bis 25 kW/m². Nach Gleichung (2.27) wird in der Modellierung wird ab einem kritischen Dampfgehalt von

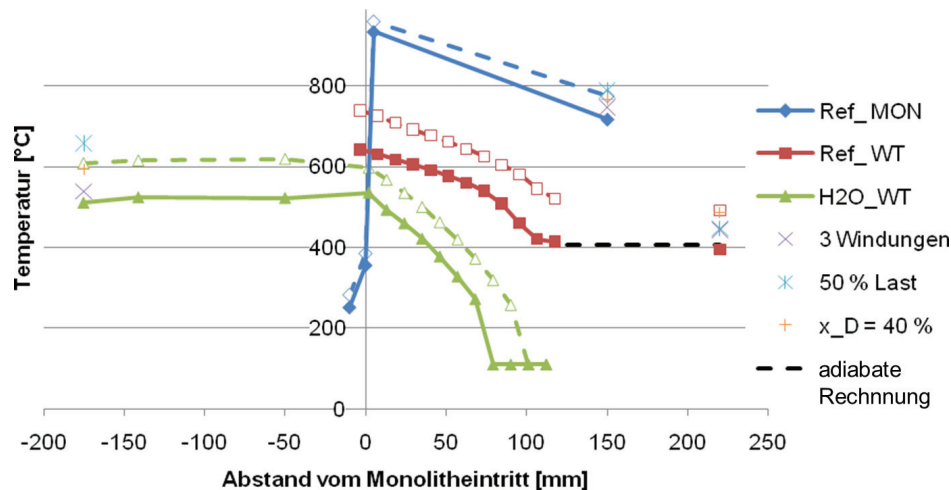


Abb. 7.22: Temperaturverläufe im modellierten ATR 11 Wärmetauscher mit *wall-jet* Randbedingung im Auslegungspunkt sowie das Verhalten der charakteristischen Temperaturen bei Variation der Betriebsparameter (leere Symbole)

$x_{krit} = 0,84$ das Auftreten einer Siedekrise berücksichtigt. Hierzu wird für die halbe Wärmetauscherfläche der Wärmeübergangskoeffizient für eine reine Dampfströmung bei Siedetemperatur berechnet.

Abbildung 7.22 zeigt die Temperaturverläufe im ATR 11 im Auslegungsfall mit einer Rohrlängendellänge von jeweils 3,5 Windungen. Diese Länge entspricht der konstruktiven Maximallänge, die sich im Ringspalt unterbringen lässt. Ref_{MON} bezeichnet hierbei den Temperaturverlauf des Reformats im Monolithen und Ref_{WT} den Verlauf entlang der Rohrwendel. $H2O_{WT}$ zeigt den Verlauf der Temperatur im Rohrwendelwärmetauscher. Im statischen Zustand stellt sich am Mischkammereintritt eine Dampftemperatur von etwa 511 °C ein. Diese Temperatur liegt somit etwa 31 K über der Auslegungstemperatur von 480 °C. Durch diese Temperaturerhöhung steigt in der Mischkammer die Gefahr unkontrollierbarer Vorreaktionen. Gleichzeitig wird das Temperaturniveau im weiteren Verlauf des Reaktors angehoben. Die Maximaltemperatur im Monolithen liegt bei etwa 934 °C, die Monolithaustrittstemperatur bei etwa 717 °C. Beide Temperaturen liegen somit über den Auslegungspunkten von 900 °C im Monolithen und 700 °C am Monolithaustritt. Die Verschiebung des Shiftgleichgewichts infolge der Temperaturerhöhung im Monolithen wurde hierbei nicht berücksichtigt. Aufgrund der Wärmeübertragung in die Nassdampfkammer sinkt die Temperatur im Verlauf der hemisphärischen Reformatumlenkung um 58 K. Die Eintrittstemperatur des Reformats in den Gegenstrom-Ringspalt des Wärmetauschers liegt bei 642 °C. Durch die Wärmeübertragung an die Rohrwendel und die Außenwand der Nassdampfkammer kühlt sich das Reformat im weiteren Verlauf auf eine Austrittstemperatur von 394 °C ab. Durch die, in der zweidimensionalen Modellierung nicht berücksichtigte, zusätzliche Verdampfung auf der Bodenplatte der Nassdampfkammer, ist im realen Betrieb

mit einem erhöhten Dampfanteil am Rohrwendeleintritt zu rechnen. Hierdurch steigt die effektive Rohrwendellänge zur Überhitzung des Dampfes. Somit ist am Mischkammereintritt eine Dampftemperatur oberhalb von 394 °C zu erwarten.

Um die Wirkfähigkeit des integrierten Wärmeübertragers sicherstellen zu können, wurde ein *worst-case* Szenario für die Wärmeübertragung simuliert. Hierzu wurde an hemisphärischen Auftrefffläche die *wall-jet* Randbedingung angenommen. Somit werden die experimentell nachgewiesenen Effekte des direkten Tropfenpralls vernachlässigt. Abbildung 7.22 zeigt das Ergebnis dieser Abschätzung als gestrichelten Verlauf. Der Vergleich zwischen der Monolithaustrittstemperatur und der Eintrittstemperatur der Reformatumlenkung zeigt, dass aufgrund des Filmsiedens nur ein geringer Wärmeübertrag direkt über die Hemisphäre stattfindet. Dennoch verdampft das eingespritzte Wasser bis zu einem Dampfanteil von 92 %. Die Verdampfung erfolgt hierbei hauptsächlich an der Außenwand der Nassdampfkammer. Der Nassdampf strömt im weiteren Verlauf in die Rohrwendeln und verdampft dort innerhalb des ersten Drittels der ersten Windung vollständig. Im Gegenstromwärmetauscher wird der Dampf auf eine Mischkammereingangstemperatur von 609 °C überhitzt. Hierdurch hebt sich das Temperaturniveau im gesamten Reaktor. Die Reformataustrittstemperatur liegt mit 491 °C weit über der maximalen Eintrittstemperatur der Shiftreaktoren von etwa 410 °C.

Die Reformataustrittstemperatur wird allein durch die Gesamtenergiebilanz des Reformers bestimmt. Unter der Annahme konstanter Wärmeverluste über die Außenwand und durch die Düsenkühlung und einer konstanten Reaktionsrate der Shiftreaktion, sind die Eduktzusammensetzung der chemischen Reaktionen, der Dampfanteil am Reformereintritt und die Reformataustrittstemperatur die einzigen Freiheitsgrade im System. Die Reformataustrittstemperatur lässt sich somit entweder durch einen erhöhten Wärmebedarf der Verdampfung oder einen geringeren Wärmeeintrag durch die chemischen Reaktionen absenken. Mit den vorangegangenen Reformergenerationen wurde experimentell ein stabiles Betriebsfeld für den Reaktor ermittelt. Hierbei bot die externe Dampfleitung zwischen Wärmetauscher und Mischkammer einen zusätzlichen Freiheitsgrad, da einerseits durch thermische Verluste Wärme abgegeben wird, andererseits ein weiteres Überhitzen des Dampfes möglich ist. Durch die Integration des Wärmetauschers muss dieses ermittelte Betriebsfeld für den ATR 11 experimentell validiert und gegebenenfalls angepasst werden. Eine Anpassung der Dampftemperatur ist hingegen konstruktiv möglich. Eine Verringerung der Anzahl der Rohrwindungen führt hier zu einer Abnahme der Wärmetauscherfläche. Der Dampf wird somit weniger stark überhitzt. Hierdurch sinkt wiederum das Temperaturniveau im gesamten Reaktor, wodurch der Effekt noch verstärkt wird. Im Gegensatz zur Reformataustrittstemperatur lässt sich die Dampftemperatur somit konstruktiv beeinflussen.

Im Rahmen einer Parameteranalyse des integrierten Wärmeübertragers wurde der Betrieb bei 50 % Last, bei einem Eintrittsdampfgehalt von $x_D = 40 \%$ und bei einer Designmodifikation mit einer auf drei Windungen gekürzten Rohrwendel untersucht. Die weiteren Betriebsparameter wurden auf Basis der *worst-case* Abschätzung konstant beibehalten. Abbildung 7.22 zeigt die Tendenzen der Temperaturverläufe an den charakteristischen Punkten am Mischkammereintritt und am Monolithaustritt. Analog zum *worst-case* Szenario verdampft das Wasser in der ersten drittel Windung der Rohrwendel vollständig. Bei Verringerung der Last nimmt die Strömungsgeschwindigkeit der Fluide schneller ab als die Wärmeübergangskoeffizienten. Somit

kommt es im Wärmetauscher zu einem stärkeren thermischen Ausgleich zwischen den Fluiden. Der Dampfstrom wird dabei auf 658 °C überhitzt. Bei einem Eintrittsdampfgehalt von $x_D = 40$ % verdampft das Wasser, trotz des erhöhten Wasseranteils, ebenfalls in der ersten drittel Windung vollständig. Aufgrund der zum Verdampfen zusätzlich benötigten Wärme wird der Dampf jedoch nur auf 593 °C überhitzt. Hierdurch sinkt das Temperaturniveau im gesamten Reaktor. Durch den gesenkten Dampfanteil am Eintritt ändert sich die Gesamtenergiebilanz. Theoretisch ist am Reformeraustritt eine Temperaturabnahme von etwa 35 K zu erwarten. Die Modellierung liefert jedoch die weitaus geringere Temperaturabnahme von 4 K. In einem auf drei Windungen verkürzten Rohrwendelbündel wird der Dampf weniger stark überhitzt. Am Mischkammereintritt liegt die Temperatur bei 443 °C. Dies entspricht, im Vergleich zum Fall mit 3,5 Windungen, einer Temperaturabnahme von etwa 10 %. Im Strömungsverlauf senkt sich das Temperaturniveau im gesamten Reformer. Der Nassdampf wird erst nach einer vollständigen Windung der Rohrwendel verdampft. Da somit weniger Windungen zur weiteren Überhitzung des Dampfes zur Verfügung stehen, verstärkt sich der beschriebene Effekt.

7.3.2 Fehleranalyse und Bewertung der CFD-Modellierung

Abbildung 7.22 zeigt die für die unterschiedlichen Modelle und Parametereinstellungen berechneten Reformattemperaturen am Reformeraustritt. Aus der Gesamtenergiebilanz ergibt sich für alle Modellierungen mit einem Eintrittsdampfgehalt von 50 % die gleiche theoretische Austrittstemperatur. Aus der Parameteranalyse ergibt sich als Mittelwert eine Temperatur von 434 °C, mit einer Standardabweichung von 9,5 %. Werden nur die Simulationen auf Basis des *worst-case* Szenarios berücksichtigt, liegt der Mittelwert bei 447 °C, mit einer Standardabweichung von 8,5 %. Als Richtwert für die Genauigkeit der durchgeführten Modellierungen wurde, bei gleichen Rahmenbedingungen und Annahmen, die Reformataustrittstemperatur mittels gemittelter Stoffgrößen berechnet. Das Ergebnis dieser Rechnung ist als gestrichelte schwarze Linie in Abbildung 7.22 eingetragen. Die mit dem hergeleiteten Wärmeübertragungsmodell berechnete Austrittstemperatur liegt um 3 % unter dem theoretischen Wert. Die mittlere Abweichung der auf dem *worst-case* Szenario basierenden Simulationen liegt unter 10 %. Die in der vereinfachten 2D-Modellierung verwendeten Modelle zur Berechnung der Wärmeübergangskoeffizienten von Nassdampf haben eine Genauigkeit von 15 % [50]. Jedoch konnte in vorangegangenen Messungen eine gute Übereinstimmung zwischen Modellierung und Experiment nachgewiesen werden. Die durchgeführte Fehleranalyse zeigt, anhand theoretischer Temperaturen im ATR, eine Modellierungsungenauigkeit von unter 10 % bis 15 %. Der Haupteffekt resultiert aus der Vorhersage des Siedeverhaltens des aufgespritzten Tropfensprays. Auf Basis der experimentell hergeleiteten Modelle lässt sich diese Ungenauigkeit auf unter 5 % senken. Hierbei ist jedoch zu beachten, dass die theoretische Berechnung der Austrittstemperatur selbst fehlerbehaftet ist. Weitere Ungenauigkeiten resultieren aus der vereinfachten 2D-Darstellung des ATR und können durch eine weiterführende 3D-Modellierung behoben werden.

Die durchgeführten CFD-Modellierungen haben gezeigt, dass das Konzept eines reinen Gegenstromwärmetauschers im ATR 11 die Anforderungen erfüllen kann. Im Vergleich zu den vorangegangenen Konzepten entfällt jedoch ein Freiheitsgrad der Regelung. Die Reformataustrittstemperatur lässt sich nur über den Dampfanteil des Nassdampfes oder die Eduktzu-

sammensetzung regeln. Hierfür ist eine ausführliche experimentelle Validierung und Anpassung des Betriebsbereichs des ATR 11 erforderlich. Die Dampftemperatur am Mischkammereintritt lässt sich direkt über die Rohrwendelgeometrie beeinflussen. Die ermittelte Temperatur liegt für den Auslegungsfall im Bereich von 434 °C mit einer Ungenauigkeit von etwa 10 %. Die maximale Eintrittstemperatur der Shiftreaktoren liegt bei 410 °C. Eine Kürzung der Rohrwendeln um je eine halbe Windung führt zu einer Verringerung der Temperatur von etwa 10 %. Eine Abweichung von der optimalen Geometrie ergibt zu hohe oder zu niedrige Dampftemperaturen im Bezug auf den Auslegungspunkt. Der gleiche Effekt tritt bei Variation der Last auf. Einer solchen Abweichung lässt sich über eine entsprechende Variation des Dampfanteils entgegenwirken. Hierbei wird jedoch zwangsläufig die Reformataustrittstemperatur geändert. Aus den Massenströmen und spezifischen Wärmekapazitäten ergibt sich für eine Temperaturänderung von 1 K im Reformat eine Temperaturänderung von etwa 3 K im überhitzten Dampf. Bei starken Temperaturabweichungen kann es notwendig sein, die Gesamtenergiebilanz durch eine Änderung der Eduktzusammensetzung und somit der chemischen Reaktionen zu beeinflussen. Aus den durchgeführten Untersuchungen lässt sich eine optimale Rohrwendelgeometrie von 2,5 bis 3 Windungen herleiten. Hierbei ist jedoch eine numerische Modellierungsungenauigkeit von 10 % bis 15 % zu beachten. In einer ersten Prototypenserie des ATR 11 sind daher Prototypen mit unterschiedlicher Rohrwendelgeometrie geplant.

7.4 Zusammenfassende Bewertung der Modelle und Methoden

Im dritten Schwerpunkt dieser Arbeit wurden die integrierten Wärmeübertrager und Verdampfer in den Kernkomponenten der Brenngaserzeugung betrachtet. Die Standard-CFD-Modellbibliothek stellt hierzu lediglich Modelle zur Beschreibung von Tropfen-Wand-Wechselwirkungen bei niedrigen wandnormalen Weberzahlen zur Verfügung. Als Basis der Modellierung der Wärmeübertragungsmechanismen in ein aufgespritztes Tropfenspray wurden Verdampfungsexperimente an einer ebenen Heizplatte durchgeführt. Die Wärmeübertragungsmechanismen wurden für Wasserbeaufschlagungsdichten zwischen 0,3 $\text{kg}/\text{m}^2/\text{s}$ und 0,5 $\text{kg}/\text{m}^2/\text{s}$ und für Wandtemperaturen zwischen 200 °C und 600 °C untersucht. Die experimentellen Ergebnisse der ebenen Heizplatte wurden anhand von Strömungsvisualisierungsversuchen im katalytischen Brenner CAB 2 auf hemisphärische Prallflächen übertragen. Der so ermittelte charakteristische Leidenfrostpunkt der Verdampfung liegt bei $T_L = 290$ °C. Bei Temperaturen oberhalb des Leidenfrostpunktes werden dabei etwa 2/3 der aufgespritzten Tropfen von der hemisphärischen Prallfläche reflektiert. Das statistische Siedeverhalten des Tropfensprays wird in den charakteristischen Siedebereichen durch experimentell ermittelte Wertepaare der Wasserbeaufschlagungsdichte, der Wandtemperatur und des übertragenen Wärmestroms modelliert. Das so hergeleitete Modell wurde am Fallbeispiel des CAB 2 durch Visualisierungsexperimente, post-mortem Analysen und Prototypentests validiert. Dies erlaubt eine fundierte Modellierung und Vorhersage des Strömungs- und Wärmeübergangsverhaltens im Auftreffbereich des Wassersprays.

Auf Basis des hergeleiteten Modells wurde der katalytische Brenner CAB 3 in der Leistungsklasse 10 kW_{el} ausgelegt und optimiert. Der über die Prallfläche übertragene Wärmestrom wurde dabei durch ein zusätzlich Leitblech im Abgasstrom maximiert.

Die in den autothermen Reformer eingebauten Rohrwendeln erfordern in einer dreidimensionalen Modellierung einen hohen Modell- und Rechenaufwand. Als Werkzeug der WärmetauscherAuslegung wurde eine zweidimensionale Modellierungsmethodik, auf Basis empirischer Zusammenhänge aus der Literatur, entwickelt und angepasst. Die hergeleitete Methodik konnte anhand von Prototypentests mit dem ATR 8-V2 validiert werden. Für beide Berechnungsmethoden wurde eine umfassende Fehleranalyse durchgeführt. Anhand charakteristischer Betriebsparameter wurde für die 2D-Simulationen ein maximaler Fehler von 10 % bis 15 % ermittelt. Die vereinfachte Methodik wurde zur Auslegung der integrierten Rohrwendelwärmeübertrager im autothermen Reformer ATR 10 in der Leistungsklasse 50 kW_{el} angewandt. Hier konnte als zusätzliche Komponente ein Luftvorwärmer in den Reaktor integriert werden, welcher gleichzeitig eine wärmedämmende Funktion übernimmt. Die vollständige Integration der Wärmeübertrager erlaubt hierbei ein kompakteres Design des Gesamtsystems.

Beide Modellierungsmethoden wurden zur Auslegung des autothermen Reformers ATR 11 kombiniert. Der Wärmeübertrager dieses Reaktors vereinigt die Wassereinspritzung und die Prallflächenkonstruktion des CAB 3 mit dem Rohrwendelkonzept des ATR 9.2. Hauptaugenmerk der Simulationsrechnungen lag dabei auf Parameterstudien des integrierten Wärmeübertragers. Hierdurch wurde erstmals der Nassdampf-Verdampfer und Überhitzer vollständig in einen autothermen Reformer der Leistungsklasse 10 kW_{el} integriert.

In allen drei Fallbeispielen wurden CFD-Simulationen als wichtiges Werkzeug während der Konstruktion der Komponenten eingesetzt.

8 Implementierung eines CFD-Gesamtmodells

In den vorangegangenen Kapiteln wurden CFD-Modelle zur Beschreibung der modulierbaren Einspritzsysteme, der chemischen Hauptreaktionen und der integrierten Wärmeübertrager hergeleitet und validiert. Die Kombination dieser Modelle erlaubt die Auslegung der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung in CFD-Gesamtmodellen. In Kapitel 7 wurden dabei an den Fallbeispielen des CAB 3 und des ATR 11 erste CFD-Gesamtmodelle simuliert. Die Simulationen der beiden diskutierten Reaktoren erforderten jedoch nicht die vollständige CFD-Modellbibliothek. Im folgenden Abschnitt wird ein CFD-Gesamtmodell eines autothermen Reformers auf Basis der im Rahmen der vorliegenden Arbeit erweiterten Modellbibliothek implementiert. Die Modellierung bildet somit eine Zusammenfassung der im Rahmen dieser Arbeit hergeleiteten und validierten CFD-Teilmodelle. Als Fallbeispiel wird hierbei der erste Designentwurf des autothermen Reformers ATR 12 betrachtet. Der integrierte Wärmeübertrager dieses Reaktors vereint Designelemente des ATR 11 und des CAB 3. Somit bildet das im folgenden hergeleitete Reaktorkonzept des ATR 12 den ersten Schritt in der Entwicklung der wiederum nächsten Reaktorgeneration.

8.1 Konzeptherleitung und Modellerstellung am Fallbeispiel des autothermen Reformers ATR 12

Wie bereits in Tabelle 4.1 gezeigt, wird der integrierte Wärmeübertrager im ATR 12 als Ringspaltwärmeübertrager ausgeführt. Das Reaktorkonzept vereint somit die Mischkammer und die pulsierende Einspeisung des ATR 11 mit dem Wärmeübertragerkonzept des CAB 3. Im Reaktordesign kann der Nassdampf-führende Ringspalt des Wärmeübertragers an drei unterschiedlichen Positionen angeordnet sein. Die Positionierung des Ringspalts zwischen dem Monolithen und dem inneren Reformat-Ringspalt führt hierbei zu einer starken thermischen Beeinträchtigung der chemischen Reaktionen. Eine Positionierung des Nassdampf-Ringspalts zwischen dem Druckmantel und dem äußeren Reformat-Ringspalt führt zu einer effektiven Wärmedämmung des Gesamtreaktors. Gleichzeitig ist hierbei jedoch die vollständige Verdampfung des Wassers nicht sichergestellt, da Tropfen an der äußeren kalten Wand des Ringspalts abfließen können. Aus diesen Gründen wird im Design des ATR 12 der Nassdampf-führende Ringspalt des Wärmeübertragers zwischen den beiden Reformatumlenkungen positioniert. Das Konzept eines Ringspaltwärmeübertragers mit hemisphärischer Prallfläche analog zum Design des ATR 11 erfordert ein Kreuzen des Reformat- und des Nassdampfstroms. Im ersten Designentwurf werden der innere und der äußere Ringspalt des Reformats über Rohre durch den Nassdampf-Ringspalt verbunden. Im Nassdampf-Ringspalt des Wärmeübertragers kann die effektive Wärmeübertragungsfläche durch den Einbau eines Drahtgestricks erhöht werden. Ein solches Gestrick unter-

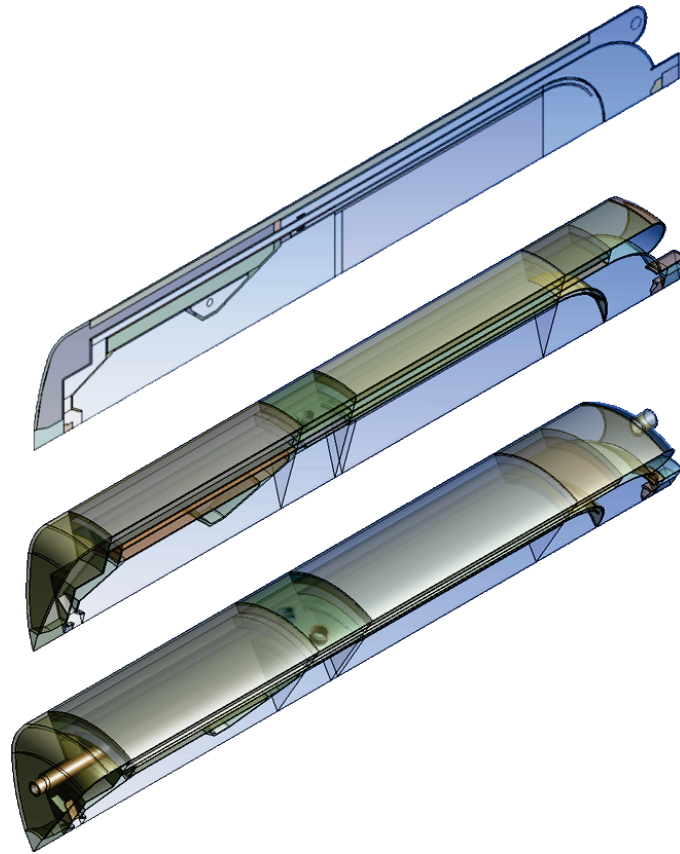


Abb. 8.1: Erster Designentwurf des ATR 12 als 2D-Modell sowie als 3D-Modelle in Ausschnitten von 30° und 60°

bindet gleichzeitig das Abfließen von agglomerierten Wassertropfen an den Kanalwänden. Um im ATR 12 den Betrieb in niedrigen Lastbereichen bis zu 25 % des Auslegungspunkt zu ermöglichen ist eine pulsierende Einspritzung vorgesehen. Diese wird analog zum Einspritzsystem des ATR 11 in Kapitel 5 realisiert. Da die Mischkammern des ATR 12 und des ATR 11 auf der Konstruktion des ATR 9.2 basieren ist eine geometrische Ähnlichkeit der Einspritzzonen gegeben. Die für den ATR 11 ermittelten Ergebnisse lassen sich somit auf den ATR 12 übertragen. Dementsprechend wird eine Verschlusszeit der Einspritzung von $\Delta t_V = 30 \text{ ms}$ als optimaler betriebsparameter angenommen.

Abbildung 8.1 zeigt das Grunddesign des ATR 12 in drei Genauigkeitsstufen der Modellierung. Dargestellt ist der Reaktor als 2D-Modell sowie als periodisches 3D-Modell. Der in der Mitte dargestellte 30°-Schnitt bildet dabei, für die angenommenen Geometrien der Leitbleche im Reaktor, die kleinste Wiederholungseinheit ab. Die genaue Gestaltung der Edukt- und Produkt-

leitungen im Reaktor wird in diesem Modell nicht berücksichtigt. Das Modell wurde mit etwa $1,66 \cdot 10^6$ Volumenelementen vernetzt, was übertragen auf die komplette Geometrie einem Netz von etwa 20 Millionen Volumenelementen entspricht. Der dargestellte 60° -Schnitt des Reaktors zeigt einen ersten vollständigen Designentwurf, inklusive der Edukt- und Produktleitungen. Das Modell wurde mit etwa $6 \cdot 10^6$ Volumenelementen vernetzt, was übertragen auf die komplette Geometrie einem Netz von etwa 36 Millionen Volumenelementen entspricht. Durch die Modellierung als 2D-Modell oder periodischem 3D-Modell wird hierbei eine künstliche Symmetrie erzeugt. Innerhalb des Reaktors sind starke Abweichungen von einem achsensymmetrischen Strömungsbild lediglich durch instationäre Effekte in der Mischkammer zu erwarten. Da die Mischkammer des Reaktors in den Arbeiten von Z. Porš und im Rahmen dieser Arbeit ausführlich als 3D-Teilmodell untersucht wurde, ist die vereinfachende Darstellung als periodisches 3D-Gesamtmodell zulässig.

Die dargestellten Modelle eignen sich für unterschiedliche Stadien der Reaktorentwicklung. Die zweidimensionale Modellierung dient zur Validierung des ersten Konzeptentwurfs. Durch den annähernd rotationssymmetrischen Aufbau des Reaktors bietet auch das 2D-Modell eine hohe Genauigkeit. Lediglich das Strömungsverhalten in der ATR-Mischkammer wird vereinfacht abgebildet. Im Gegensatz zur Modellierung des ATR 11 in Kapitel 7 erlaubt der rotationssymmetrische Ringspaltwärmeübertrager dabei die durchgängige Modellierung des Nassdampfs als diskrete Phase. Das dargestellte periodische 30° -3D-Modell dient zur Optimierung der Reaktorgeometrie. Hauptoptimierungsparameter sind dabei die Spalthöhen der Wärmeübertragerkanäle sowie der Einsatz von Strömungseinbauten zur Erhöhung der aktiven Wärmeübertragerfläche. Im dargestellten periodischen 60° -3D-Modell werden zusätzlich die Edukt- und Produktleitungen berücksichtigt. Diese weiterführenden Entwicklungsschritte erfordern eine enge Vernetzung mit der Konstruktion und liegen außerhalb der Ziele dieser Arbeit.

Im folgenden Abschnitt wird der hergeleitete erste Designentwurf des ATR 12 als 2D-Modell und als 3D-Modell simuliert. Die Modellierung des Reaktors erfordert dabei die im Rahmen dieser Arbeit erweiterte CFD-Modellbibliothek:

- Die pulsierte Einspritzung wird analog zu Kapitel 5 modelliert. Hierbei wird auf die ermittelte optimale Verschlusszeit der Einspritzung von $\Delta t_V = 30$ ms zurückgegriffen.
- Die chemischen Reaktionen im Monolithen des Reaktors werden mit dem in Kapitel 6 hergeleiteten Ähnlichkeitstheoretischen 2-Zonen-Modell abgebildet.
- Die Modellierung des Wassersprays und der Nassdampfströmung im Wärmeübertrager basiert auf dem in Kapitel 7 hergeleiteten geometriespezifischen Modell der Tropfen-Wand Wechselwirkungen.

8.2 Konzeptvalidierung des ATR 12 im implementierten 2D-Gesamtmodell

Zur Validierung des Wärmeübertragerkonzepts wurde der autotherme Reformer ATR 12 mit einem 2D-Gesamtmodell simuliert. Der erste Konzeptentwurf sieht dabei keine Einbauten in

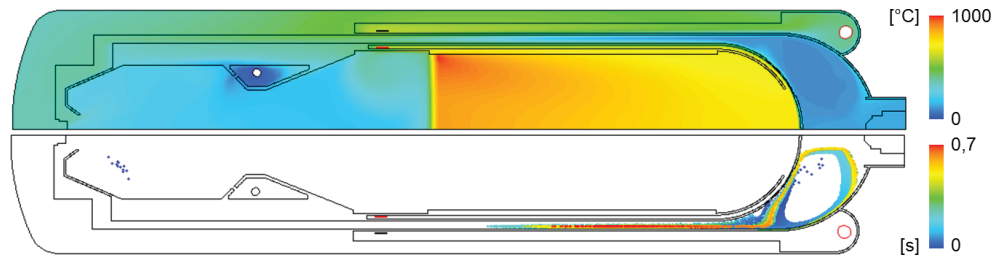


Abb. 8.2: Temperaturprofil und Tropfenverteilung im ATR 12 bei 25 % Last

den Ringspalten des Wärmeübertragers vor. Um in der Validierung den gesamten Betriebsbereich zu berücksichtigen, wurde der Reaktor bei der minimalen Last von 25 % und bei der maximalen Last von 120 % simuliert.

Abbildung 8.2 zeigt das Temperaturprofil und die Nassdampfströmung im ATR 12 bei 25 % Last. Im Bereich des Ringspalts strömen die Tropfen dabei analog zur Sprühströmung in Abbildung 2.19. Die Wärmeübertragung erfolgt fast vollständig über die kontinuierliche Phase. Agglomerierte Wassertropfen an der Aussenwand werden, wie diskutiert, im verwendeten DPM-Modell nicht abgebildet. Das Wasser im Ringspalt des Wärmeübertragers ist auf etwa halber Höhe des Monolithen vollständig verdampft. Der entstehende Dampf wird bis zum Eintritt in die Mischkammer auf etwa 400 °C überhitzt. Die Mischkammer wird dabei durch den Wärmeübertrager umkapselt. Im Vergleich zum ATR 11 in Abbildung 7.21 werden somit thermische Verluste über die Mischkammerwand verhindert. Die simulierte Temperatur des überhitzten Dampfes liegt im Bereich der experimentell ermittelten Mindesttemperatur von 400 °C. Konstruktiv kann die Wärmeübertragung in den Ringspalt durch das Einbringen eines Drahtgestricks in den Ringspalt verbessert werden.

Die minimale Last von 25 % erfordert im ATR 12 die pulsierende Einspritzung des Kraftstoffs. Abbildung 8.3 zeigt das Einspritz-, Verdampfung- und Gemischbildungsverhalten in der Mischkammer des ATR 12 für die in Kapitel 5 ermittelte optimale Verschlussdauer von $\Delta t_V = 30$ ms. Infolge der pulsierenden Einspritzung und Verdampfung zeigt der Gesamtmassenstrom am Monolithenritrit ein alternierendes Verhalten. Der zeitliche Verlauf ist dabei im Bezug auf die Einspritzung um die hydrodynamische Verweilzeit des Gasgemischs in der Mischkammer versetzt. Die maximale Amplitude des Gesamtmassenstroms stimmt mit der ebenfalls dargestellten Amplitude für ein inkompressibles Gasgemisch überein. Durch die zweidimensionale Modellierung der Mischkammer wird die Gemischbildung vereinfacht abgebildet. Die exakte Darstellung des vollständigen Strömungsbildes in der Mischkammer in einem dreidimensionalen Modell liefert eine effektivere Durchmischung, wodurch sich der Kurvenverlauf des Gesamtmassenstroms tendenziell abflacht. Generell schwächt sich die Pulsation des Reformats im Strömungsverlauf des Reformers weiter ab. Die Modellierung des Reaktors im CFD-Gesamtmodell erlaubt die Untersuchung von Wechselwirkungen zwischen der pulsierenden Einspritzung und der Reformtemperatur. Abbildung 8.3 zeigt einen im Rahmen der Modellgenauigkeit statischen Verlauf der normierten Maximaltemperatur im Monolithen. Die Maximaltemperatur zeigt somit keine Abhängigkeit vom Pulsationsbetrieb der Kraftstoffeinspritzung. Im Bereich des Wärmeüber-

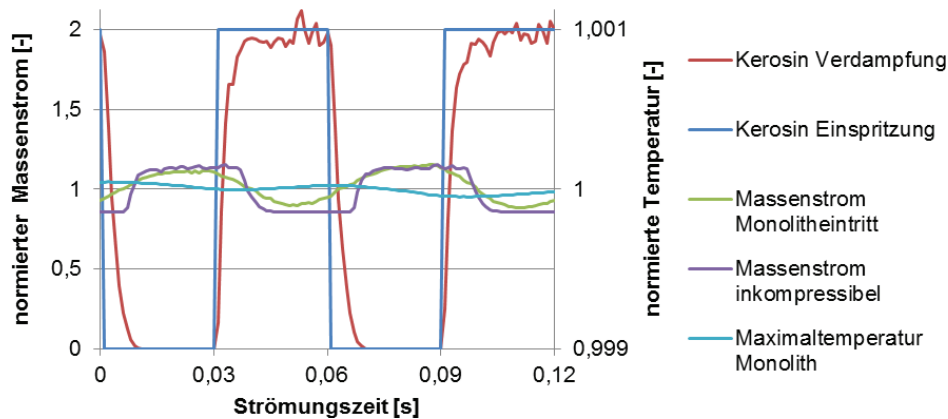


Abb. 8.3: Normierte Verläufe der Einspritzung und der Verdampfung in der Mischkammer, des Gesamtmassenstroms am Monolitheintritt und der Maximaltemperatur im Monolithen im ATR 12 bei 25 % Last im pulsierten Betrieb mit einer Verschlusszeit von 30 ms

tragers beeinflusst eine leichte Pulsation der Reformatströmung den Wärmeübergang auf die Wärmetauscherwände. Dieser Effekt wird durch die Wärmeleitung im Metall weiter ausgeglichen.

Als zweiter Betriebspunkt wurde in der vereinfachten 2D-Modellierung der Betrieb des ATR 12 bei 120 % Last simuliert. Das Strömungsverhalten der Wassertropfen im Wärmeübertrager bei 120 % Last ist in Abbildung 8.4 für eine Ringspalt ohne Einbauten dargestellt. Durch die hohe Strömungsgeschwindigkeit werden unvollständig verdampfte Wassertropfen aus den Wärmeübertrager in die Mischkammer getragen und gelangen bis in den Monolithen. Der Nassdampf tritt mit Siedetemperatur in die Mischkammer des ATR ein, so dass das eingespritzte Kerosin nicht vollständig verdampft. Hinter der Zufuhr der kalten Luft liegt die Gemischtemperatur im Monolithvorlauf unter 100 °C. Hierdurch senkt sich das Temperaturniveau im gesamten Reaktor, wodurch sich die beschriebenen Effekte weiter verstärken. Als Folge der inhomogenen Gemischbildung entsteht ein Temperaturgradient im Monolithen des ATR. Die Verdampfung im Nassdampf-Ringspalt kann konstruktiv durch eine größere Spalthöhe oder den Einbau von Strömungskörpern optimiert werden. Abbildung 8.5 zeigt das Temperaturprofil und die Tropfenströmung im ATR 12 mit Drahtgestrick im Nassdampf-Ringspalt für eine Last von 120 %. Durch die erhöhte Wärmeübertragungsfläche verdampfen die Tropfen in diesem Fall vollständig im Ringspalt. Die letzten Tropfen verdampfen dabei erst hinter dem Wärmeübertragungsbereich des Monolithen vollständig. Im Vergleich zum Betrieb bei 25 % Last erfolgt die Überhitzung des Wasserdampfs somit ohne direkte Wärmeübertragung zwischen Monolith und Dampf. Der überhitzte Dampf tritt mit etwa 350 °C in die Mischkammer des Reformers ein. Dennoch liegt das Temperaturniveau in der Mischkammer im selben Bereich wie bei 25 % Last. Die Abnahme der Dampftemperatur wird durch interne Wärmeströme ausgeglichen. Lediglich im direkten Monolithvorlauf zeigt sich bei 25 % Last eine stärkere Überhitzung des

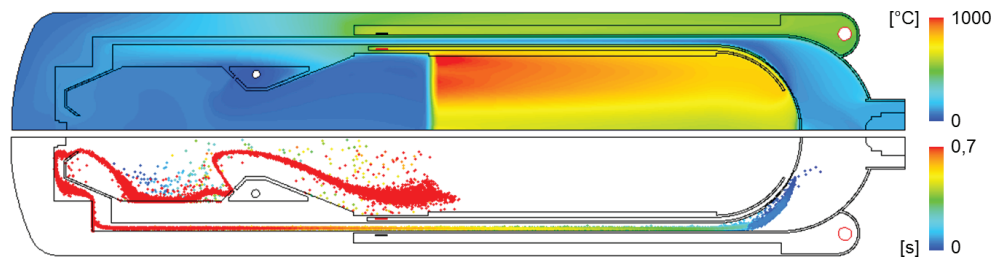


Abb. 8.4: Temperaturprofil und Tropfenverteilung im ATR 12 ohne Drahtgestrick im Nassdampf-Ringspalt bei 120 % Last

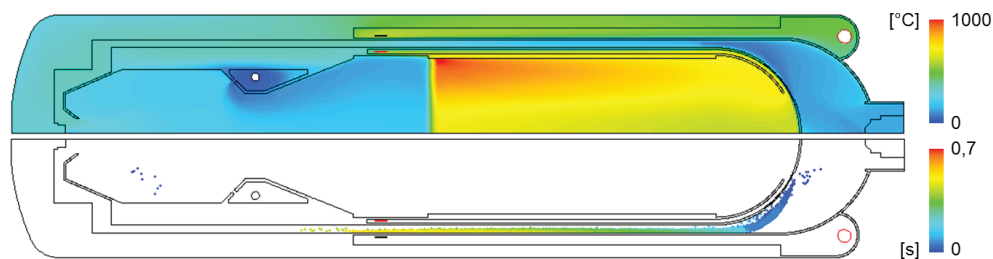


Abb. 8.5: Temperaturprofil und Tropfenverteilung im ATR 12 mit Drahtgestrick im Nassdampf-Ringspalt bei 120 % Last

Gasgemischs, wodurch hier die Gefahr von exothermen Vorreaktionen steigt. Mit steigender Last sinkt die Genauigkeit der simulierten Gemischbildung im diskutierten 2D-Modell. Hieraus resultiert im Simulationsergebnis für 120 % Last eine inhomogene Gemischzusammensetzung am Monolitheintritt.

Die Abbildungen 8.2 bis 8.4 zeigen die Funktionsfähigkeit des integrierten Ringspaltwärmeübertragers im ATR 12. Somit konnte das Reaktorkonzept mit pulsierender Einspritzung und Ringspalt-Wärmeübertrager auf Basis des implementierten CFD-Gesamtmodells validiert werden. Aufgrund der vereinfachten Reaktordarstellung im 2D-Modell erfordert eine weitere Konzeptvalidierung und Optimierung die Untersuchung des Reaktors in dreidimensionalen CFD-Gesamtmodellen.

8.3 Konzeptvalidierung und Optimierung des ATR 12 im implementierten 3D-Gesamtmodell

Als erster Validierungsschritt wurde das Designkonzept des autothermen Reformers ATR 12 in einem 2D-Modell untersucht. Die vereinfachte Darstellung des Strömungsverhaltens in der Mischkammer führt dabei mit steigender Last zu einer ungenauen Abbildung der Eduktvermischung. Die für die maximale Last von 120 % durchgeführten Simulationsrechnungen zeigen

8.3. Konzeptvalidierung und Optimierung des ATR 12 im implementierten 3D-Gesamtmodell

hierbei einen ausgeprägten radial verlaufenden Temperaturgradienten im Monolithen. Hieraus folgt, dass die zweidimensionale Modellierung nicht für die genaue Analyse und Auslegung des Reaktors in hohen Lastbereichen geeignet ist. Um eine erste Optimierung des ATR 12 zu ermöglichen wurde der Reaktor in einem periodischen 3D-Modell als 30°-Schnitt Modelliert. Der 30°-Schnitt bildet dabei die kleinste periodische Wiederholungseinheit. Die genaue Gestaltung der Edukt- und Produktleitungen wurde, wie diskutiert, in diesem Entwicklungsschritt vernachlässigt.

Abbildung 8.6 zeigt das Temperaturprofil und die Tropfenverteilung im dreidimensional modellierten ATR 12 bei 120 % Last. Das simulierte Temperaturprofil im Monolithen weist analog zu [81] einen geringen radialen Gradienten infolge von Wärmeverlusten über die Monolithhülle auf. Die Gemischbildung in der Mischkammer wird somit genau abgebildet. Das dargestellte Simulationsergebnis wurde mit einem Drahtgestrick im Nassdampf-Ringspalt berechnet. Die Wassertropfen verdampfen dabei vollständig im Ringspalt. Im Bereich des Dampfgehalts nahe $\dot{x} = 1$ strömt der Nassdampf in einer Sprühströmung durch den Wärmeübertrager. In diesem Bereich kommt es zu keinem direkten Tropfen-Wand-Kontakt, so dass die Wandnahe Grenzschicht der Strömung lokal über die Siedetemperatur überhitzt wird. Die letzten Tropfen verdampfen dabei im Bereich der Luftkammer. Wie Abbildung 8.6 zeigt erfolgt die lokale und vollständige Überhitzung des Dampfes erst in der zweiten Hälfte der Ringspalts. Dieser Bereich steht nicht in direktem thermischen Kontakt mit dem heißen Reformat. Die Überhitzung erfolgt somit ausschließlich infolge von internen Wärmeströmen zwischen den Reaktorzonon. Die Dampfeintrittstemperatur in die Mischkammer liegt in der Größenordnung der minimal zulässigen Temperatur von 400 °C. Der erste Designentwurf ermöglicht somit eingeschränkt den Betrieb des Reaktors in dem in Tabelle 4.4 definierten Betriebsbereich. Um eine stärkere Überhitzung des Dampfes am Mischkammereintritt zu ermöglichen ist eine weitere Optimierung des Wärmeübertragergeometrie notwendig. Durch eine größere Spalthöhe des Nassdampf-Ringspalts kann die Verweilzeit der Tropfen im direkten Wärmeübertragungsbereich zwischen heißem Reformat und Nassdampf erhöht werden. Durch die so verbesserte Verdampfung kann ein Teil der Überhitzung durch eine direkte Wärmeübertragung zwischen Reformat und Dampf erfolgen. Dies ermöglicht eine stärkere Überhitzung des Dampfes. Die hierzu erforderlichen weiterführenden CFD-Simulationen sind nur in enger Abstimmung mit der Konstruktion des Reaktors möglich und liegen außerhalb der Ziele dieser Arbeit.

Die Herleitung und Validierung des ersten Designentwurfs bildet den ersten Schritt in der Entwicklung der wiederum nächsten Reaktorgeneration. Der Ringspaltwärmeübertrager führt hier zu einem leichteren und kleineren Reaktordesign. Im Vergleich zum ATR 11 kann das Reaktorvolumen bei gleicher Leistungsklasse um etwa 25 % reduziert werden. Als wichtiges konstruktives Merkmal bietet sich zur weiteren Optimierung der Reaktorgeometrie die Variation der Spalthöhen im Ringspalt-Wärmeübertrager an. Die CFD-gestützte Weiterentwicklung der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung kann dabei auf dem im Rahmen dieser Arbeit entwickelten CFD-Gesamtmodells aufbauen.

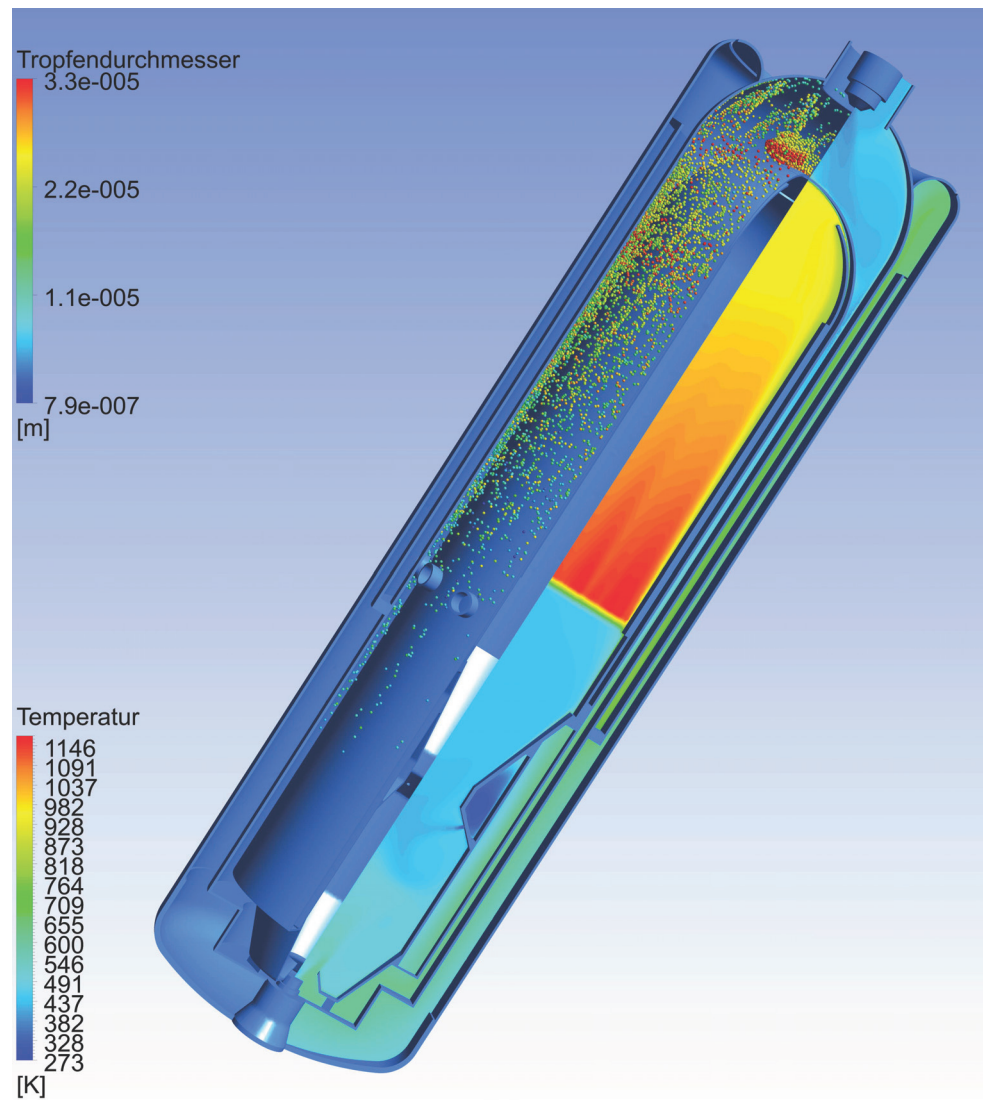


Abb. 8.6: Dreidimensional simuliertes Temperaturprofil und Tropfenverteilung im ATR 12 mit Drahtgestrick im Nassdampf-Ringspalt bei 120 % Last

8.4 Bewertung des implementierten CFD-Gesamtmodells

Die in diesem Kapitel durchgeführten CFD-Simulationen des ATR 12 haben die starken Wechselwirkungen zwischen den einzelnen Zonen des Reaktors gezeigt. Änderungen im internen Verdampfer wirken sich direkt auf das Temperaturniveau im Reaktor, die Gemischqualität und das Reaktionsverhalten im Monolithen aus. Die so geänderten Randbedingungen der Wärmeübertragung beeinflussen wiederum das Verdampfungsverhalten und die Überhitzung in den integrierten Wärmeübertragern. Durch die starke Vernetzung der einzelnen physikalischen Phänomene ist eine optimierte Auslegung der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung nur in CFD-Gesamtmodellen möglich.

Die Kombination der im Rahmen dieser Arbeit hergeleiteten CFD-Modelle und Methoden ermöglicht die Auslegung der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung in CFD-Gesamtmodellen. Das in diesem Kapitel diskutierte Fallbeispiel der ATR 12 umfasst dabei die vollständigen Erweiterungen der Modellbibliothek. Dabei wurden sowohl die thermischen Wechselwirkungen zwischen den einzelnen Reaktorzonen als auch der Einfluss der pulsierenden Einspritzung auf die chemischen Reaktionen und die Wärmeübertragung berücksichtigt. Die im Rahmen dieser Arbeit hergeleiteten Modelle basieren auf experimentellen Untersuchungen und konnten anhand von Strömungsvisualisierungsexperimenten und Prototypentests validiert werden. Somit weist das implementierte CFD-Gesamtmodell eine hohe Genauigkeit in der Abbildung der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung auf. Hierbei sind jedoch die zugrunde liegenden Annahmen und die Gültigkeitsbereiche der CFD-Teilmodelle zu berücksichtigen. Die Modellierung der pulsierenden Einspritzung basiert auf der experimentellen Untersuchung eines Düsen-Prototyp mit Schnellschlussventil. Die im Modell implementierten instationären Effekte der Einspritzung setzen eine Ähnlichkeit des verwendeten Einspritzsystems zu diesem Prototypen voraus. Insbesondere für Düsen mit einem großen Volumen zwischen Eintritt und Düsenöffnung ist hier eine erneute experimentelle Validierung der ermittelten charakteristischen Einspritzphasen notwendig. Die Modellierung der chemischen Hauptreaktionen im Monolithen des ATR basiert auf einem Ähnlichkeitstheoretischen Ansatz. Das Teilmodell eignet sich somit nicht zur vertiefenden Analyse der chemischen Prozesse im Reaktor. Gleichzeitig verhindert dieser Ansatz die Einbindung der exothermen Vorreaktionen in das CFD-Gesamtmodell. Das hergeleitete Modell der exothermen Vorreaktionen ist jedoch generell als einfaches Werkzeug der Mischkammerauslegung in CFD-Teilmodellen vorgesehen. Die Modellierung der Tropfen-Wand-Wechselwirkungen im Wärmeübertrager basiert auf dem experimentell ermittelten statistischen Verhalten eines Tropfensprays beim Wandaufprall. Dieses Modell wurde den charakteristischen Betriebsbereich der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung und auf eine hemisphärische Prallfläche angepasst. Die ermittelten Modellparameter sind somit nicht ohne eine Modifikation auf abweichende Geometrien übertragbar. Das hergeleitete Modell ist dabei nur für Wärmeübergangsphänomene gültig, in denen der Wärmeübergang durch den Tropfenprall dominiert wird.

Das implementierte CFD-Gesamtmodell erlaubt die vollständige Modellierung der charakteristischen physikalischen Phänomene in einem Brenngaserzeugungssystem für eine HT-PEFC. Die diskutierten CFD-Simulationen des ATR 12 haben hierbei die starken Auswirkungen der

internen Wechselwirkungen im Reaktor gezeigt. Eine genaue Auslegung der Reaktoren ist somit nur in CFD-Gesamtmodellen möglich. Die hergeleiteten Modelle wurden dabei spezifisch auf die Darstellung der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung angepasst. Die hergeleiteten Modelle basieren dabei auf experimentellen Untersuchungen und konnten anhand von Strömungsvisualisierungsexperimenten und Prototypentests validiert werden.

9 Zusammenfassung und Ausblick

9.1 Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurde ein vollständiges strömungsmechanisches Modell der Kernkomponenten eines Brenngaserzeugungssystems hergeleitet und darauf aufbauend die nächste Reaktorgeneration der Brenngaserzeugung entwickelt.

Am IEK-3 hat der Einsatz von CFD-Simulationen in der Reaktorauslegung einen deutlichen Entwicklungssprung in der Reaktorentwicklung ermöglicht. Den Ausgangspunkt der CFD-Modellbildung in dieser Arbeit bildeten die in vorangegangenen Arbeiten durchgeführte CFD-Simulationen von Teilkomponenten der Reaktoren. Der Fokus dieser Arbeiten lag auf der Optimierung der Gemischbildung in den Reaktionsapparten auf Basis von CFD-Standard-Modellen. Die Grundlage der Reaktorentwicklung bildeten die autothermen Reformer der Generation ATR 9 der Wassergas-Shiftreaktor WGS 3 sowie die Variationen des katalytischen Brenners CAB 2.

Um ein leichtes und kompaktes Gesamtsystem zu erreichen wurden einzelne Systemkomponenten der Brenngaserzeugung in die Hauptreaktoren integriert. Die vollständige numerische Beschreibung der Kernkomponenten erfordert somit neben Modellen zur Beschreibung der chemischen Reaktionen zusätzliche Modelle für die Verdampfung von Kraftstoff und Wasser in der integrierten Eduktaufbereitung sowie Modelle zur Beschreibung der integrierten Wärmeübertrager. Die einzelnen Zonen der Reaktoren stehen dabei in starken Wechselwirkungen miteinander. Somit ist in der Auslegung die Modellierung der Kernkomponenten als Gesamtreaktor erforderlich.

Auf Basis dieser Ausgangslage wurden zwei gleichwertige übergeordnete Entwicklungsziele definiert:

1. Die Vervollständigung der CFD-Modellbibliothek zur Simulation der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung in CFD-Gesamtmodellen.
2. Die Entwicklung der nächsten Generation der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung mit einer optimierten Integration von Systemkomponenten.

Als methodischer Ansatz der vorliegenden Arbeit wurde die numerische Strömungsmechanik eng mit experimentellen Analysen und der Reaktorkonstruktion verknüpft. Die Experimente dienten dabei im Rahmen der CFD-Modellbildung zur Untersuchung von grundlegenden physikalischen Phänomenen. Ebenso wurden Experimente zur Validierung der Simulationsrechnungen durchgeführt. Um ein ausgewogenes Verhältnis zwischen Effizienzsteigerung und konstruktivem Aufwand zu gewährleisten wurden simulative Parameterstudien in enger Abstimmung mit der Konstruktion durchgeführt. Dies ermöglichte eine effiziente und anwendungsorientierte Reaktorauslegung. Der Entwicklungsprozess basierte dabei auf Prototypentests, Laborexperimenten, Erfahrungswerten der Konstruktion und *post-mortem*-Analysen. Als Werkzeug zur

numerischen strömungsmechanischen Modellierung wurde die CFD-Software FLUENT verwendet.

Auf Basis der Reaktor-Entwicklungsstrategie und einer umfassenden Literatur- und Patentrecherche wurden die Arbeitsschwerpunkte dieser Arbeit hergeleitet. Die Anforderungen an die CFD-Modellbildung ergaben sich dabei aus den charakteristischen physikalischen Phänomenen in den Kernkomponenten der Brenngaserzeugung.

Aus dem über einem weiten Lastbereich hohen Wirkungsgrad der HT-PEFC ergibt sich für das Brenngaserzeugungssystem eine geforderte Modulierbarkeit zwischen 25 % Last und 120 % Last. Diese Variation ist in der Leistungsklasse bis zu 10 kW_{el} nicht mit kontinuierlich betriebenen Dralldruckdüsen zur Kraftstoffeinspritzung zu realisieren. Im ersten Schwerpunkt dieser Arbeit wurden somit weit modulierbare Einspritzsysteme betrachtet. Als mögliche Konzepte wurden dabei Mehrdüsenysteme und pulsierende Einspritzsysteme identifiziert. Die Auslegung eines Mehrdüsenkonzepts wurde auf Basis der Standard-CFD-Modellbibliothek am Fallbeispiel des Wassergas-Shiftreaktors WGS 5 betrachtet. In umfassenden CFD-Parameterstudien wurde eine Effektivität des Mischkammerdesigns von $\eta_{\text{Mischkammer}} = 16 \%$ erreicht. Die Gemischbildung führt zu einer maximalen lokalen Abweichung des Wassermassenanteils vom Mittelwert von unter 6 % für niedrige Lasten und von unter 2 % für hohe Lasten. Die Modellierung von pulsierenden Einspritzsystemen erforderte eine Erweiterung der CFD-Modellbibliothek. Hierzu wurden instationäre Einspritzeffekte mittels Hochgeschwindigkeitsmikroskopie untersucht. Die experimentell hergeleiteten vier Phasen der instationären Einspritzung wurden mittels eines Ähnlichkeitstheoretischen Ansatzes in ein allgemeines Modell überführt. Anhand dieses Modells wurde die pulsierende Einspritzung im ATR 11 modelliert und optimiert. Die Simulationen wurden dabei mit der für den Pulsbetrieb minimalen Taktfrequenz von 10 Hz und der sich daraus ergebenden maximalen Pulsweite von 10 ms durchgeführt. In dem für die pulsierende Einspritzung relevanten Betriebsbereich unter 50 % Last wurde am Monolitheintritt eine maximale Abweichung des Kerosinmassenstroms von 8 % zum zeitlichen Mittelwert ermittelt. Das Konzept der pulsierenden Einspritzung konnte somit validiert werden. Unter Berücksichtigung der instationären Einspritzphänomene wurde dabei optimale Betriebsparameter einer pulsierenden Einspritzung hergeleitet. Eine Verschlusszeit in der Größenordnung von 30 ms ermöglicht eine gute Gemischqualität und verhindert gleichzeitig Wechselwirkungen des voll ausgebildeten Sprays mit den Tropfen der instationären Phänomene. Die Taktfrequenz ergibt sich dabei in Abhängigkeit der Last.

Einen Schwerpunkt der Komponentenentwicklung bildete die Integration von Systemkomponenten in die Reaktoren der Brenngaserzeugung. Eine hohe Modellgenauigkeit erfordert dabei die Berücksichtigung der chemischen Reaktionen. Auf Basis der Methode der statistischen Versuchsplanung wurden Prototypentests der autothermen Reformer ATR 9.1 und ATR 9.2 und des katalytischen Brenners CAB 2 durchgeführt. Zur Darstellung der thermischen Wechselwirkungen der autothermen Reformierungsreaktionen wurde ein vereinfachter Modellierungsansatz auf Basis von Quell- und Senktermen der Energie und der Reaktanden hergeleitet. Die experimentelle Validierung dieses Modells lieferte eine maximale Abweichung der charakteristischen Temperaturen von 6,1 % und eine maximale Abweichung der Massenanteile von 11,7 %. Zur Modellierung der katalytischen Verbrennung auf Basis eines Arrhenius-Ansatzes wurden Modellparameter aus der Literatur anhand der Prototypentests am CAB 2 validiert und modifiziert.

Die hergeleiteten und validierten Reaktionsmodelle ermöglichen die Einbindung der chemischen Hauptreaktionen bei der Auslegung der integrierten Wärmeübertrager. Zur Untersuchung der exothermen Vorreaktionen wurde ein vereinfachtes Modell der ATR-Mischkammer auf Basis von idealen Reaktoren hergeleitet und in Matlab/Simulink implementiert. Das modellierte Verweilzeitverhalten des Reaktorsystems wich dabei um unter 15 % von dem in Strömungsvisualisierungsexperimenten ermittelten Verweilzeitverlauf ab. Auf der Basis experimenteller Untersuchungen und qualitativer Zusammenhänge aus der Literatur wurde ein vereinfachtes Reaktionsmodell der exothermen Vorreaktionen entwickelt und in die CFD-Simulationen übertragen. Die exothermen Vorreaktionen bilden ein lokal stark abgegrenztes Reaktionsgebiet als schmales Band im Vorlauf des Monolithen und an der Trennwand zwischen Mischkammer und Reformat. Durch interne Wärmeströme in diesem Bereich kann eine Selbstzündung des Reformats erfolgen. Anhand der Ergebnisse wurden erste Modifikationen der ATR-Konstruktion und der Betriebsparameter definiert. Als einfache Maßnahme zur Unterdrückung der Vorreaktionen bietet sich die zusätzliche thermische Isolierung der Mischkammer im Bereich der Reformatumlenkung an.

Die hergeleiteten CFD-Modelle der chemischen Reaktionen bilden die Basis der Auslegung der integrierten Wärmeübertrager in CFD-Gesamtmodellen. Dies erfordert zusätzliche Modelle zur Beschreibung der Zweiphasenströmung Nassdampf inklusive der Phasenübergangsphänomene. Die Wärmeübertragung in den Einspritzkammern der Kernkomponenten wird dabei durch den Tropfenprall bei hohen Weberzahlen dominiert. Dieser Effekt wird in der Standard-CFD-Modellbibliothek nicht berücksichtigt. Als Basis der Modellbildung des Wärmeübertragungsmechanismus beim Tropfenprall wurden Verdampfungsexperimente an einer ebenen Heizplatte durchgeführt. Die experimentellen Ergebnisse wurden anhand von Strömungsvisualisierungsversuchen im katalytischen Brenner CAB 2 auf hemisphärische Prallflächen übertragen. Der so ermittelte charakteristische Leidenfrostpunkt der Verdampfung liegt bei $T_L = 290\text{ °C}$. Das statistische Siedeverhalten des Tropfensprays wird in den charakteristischen Siedebereichen durch experimentell ermittelte Wertepaare der Wasserbeaufschlagungsdichte, der Wandtemperatur, des übertragenen Wärmestroms und des Reflektionsanteils modelliert. Das so hergeleitete Modell wurde am Fallbeispiel des CAB 2 durch Visualisierungsexperimente, post-mortem Analysen und Prototypentests validiert. Als Fallbeispiel wurde der katalytische Brenner CAB 3 mittels des hergeleiteten Modells simuliert und optimiert. Der über die Prallfläche übertragene Wärmestrom wurde dabei durch ein zusätzliches Leitblech im Abgasstrom maximiert. Die in den autothermen Reformern eingebauten Rohrwendeln erfordern in einer dreidimensionalen Modellierung einen hohen Modell- und Rechenaufwand. Als Werkzeug der Reaktorauslegung wurde daher eine zweidimensionale CFD-Methodik auf Basis empirischer Wärmeübergangsgesetze entwickelt. Die hergeleitete Methodik konnte anhand von Prototypentests des ATR 8-V2 validiert werden. Für beide Berechnungsmethoden wurde eine umfassende Fehleranalyse durchgeführt. Anhand charakteristischer Betriebsparameter wurde für die 2D-Simulationen ein maximaler Fehler von 10 % bis 15 % ermittelt. Die vereinfachte Methodik wurde zur Auslegung der integrierten Rohrwendelwärmeübertrager im autothermen Reformer ATR 10 angewandt. Hier konnte als zusätzliche Komponente ein Luftvorwärmer in den Reaktor integriert werden, welcher gleichzeitig eine wärmedämmende Funktion übernimmt. Die beiden Modellierungsmethoden wurden zur Auslegung des autothermen Reformers ATR 11 kombiniert, welcher die Einspritzkammer

des CAB 3 mit einem Rohrwendelkonzept analog zum ATR 9.2 vereint. Hierdurch wurde der Wärmeübertrager erstmals vollständig in einen autothermen Reformer integriert.

Die mit den hergeleiteten CFD-Modellen erweiterte CFD-Modellbibliothek ermöglicht erstmals die vollständige strömungsmechanische Modellierung der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung. In den Gesamtmodellen werden dabei sowohl die thermischen Wechselwirkungen zwischen den Reaktorzonen als auch der Einfluss der pulsierenden Einspritzung auf die chemischen Reaktionen und die Wärmeübertragung berücksichtigt. Am Fallbeispiel des autothermen Reformers ATR 12 wurde ein CFD-Gesamtmodell inklusive der pulsierenden Einspritzung, der chemischen Reaktionen und der Tropfen-Wand Wechselwirkungen implementiert. Der auf Basis der Reaktoren ATR 11 und des CAB 3 hergeleitete erste Designentwurf des ATR 12 bildete dabei den ersten Schritt in der Entwicklung der wiederum nächsten Reaktorgeneration. Anhand der durchgeführten Simulationen in den Eckpunkten des Betriebsbereichs konnte das Reaktorkonzept mit vollständig integriertem Ringspaltwärmeübertrager validiert und optimiert werden.

Zusammenfassend wurden in dieser Arbeit die beiden definierten übergeordneten Entwicklungsziele der Modellbildung und der Reaktorauslegung erreicht. Auf Basis der entwickelten Modelle wurde die folgende Generation der Reaktoren mit CFD-Gesamtmodellen simuliert und ausgelegt. Vor diesem Hintergrund wurden im Rahmen dieser Arbeit drei wesentliche Ergebnisse erzielt:

1. Anhand von Prototypentests wurde ein CFD-Modell zur Beschreibung von pulsierenden Einspritzvorgängen hergeleitet. Hierbei wurden die mittels Hochgeschwindigkeitsmikroskopie ermittelten instationären Einspritzphänomene über einen ähnlichkeitstheoretischen Ansatz in das Modell übertragen. Das hergeleitete Modell erlaubt erstmals die Modellierung von instationären weit modulierbaren Einspritz- und Gemischbildungssystemen. Hierdurch konnte der Betriebsbereich der autothermen Reformer von einer bisherigen minimalen Last zwischen 50 % und 60 % auf eine minimale Last von unter 25 % erweitert werden.
2. Die CFD-Modellbibliothek wurde um ein Modell zur Beschreibung von Tropfen-Wand-Wechselwirkungen bei hohen wandnormalen Weberzahlen erweitert. Das auf Basis von Laborexperimenten und Strömungsvisualisierungsversuchen hergeleitete Modell erlaubt somit die Simulation der Wärmeübergangsphänomene an den Prallflächen des CAB 3, des ATR 11 und des ATR 12. Hierbei verdampfen etwa 16 % der aufgespritzten Tropfen direkt beim ersten Wandkontakt. Die Vernachlässigung der Pralleffekte in den CFD-Standardmodellen führt dementsprechend zu einer Überdimensionierung der Wärmeübertrager um etwa 20 %. Eine solche Überdimensionierung bedeutet ein Scheitern der kompakten Reaktorkonzepte und führt zu zu stark überhitzten Dampfströmen. Das hergeleitete genaue Modell stellt somit ein kompaktes Reaktordesign und die Funktionsfähigkeit der Wärmeübertrager sicher.
3. Die CFD-Modellbibliothek wurde zur vollständigen Beschreibung der Kernkomponenten in CFD-Gesamtmodellen erweitert. Hierzu wurden unter anderem Modelle zur Beschreibung der chemischen Hauptreaktionen hergeleitet. Die internen Wärmeströme zwischen

den einzelnen Reaktorzonen liegen dabei in der Summe in der Größenordnung von 20 % des in den Wärmeübertragern vom Reformat abgegebenen Wärmestroms. Die genaue Auslegung der Wärmeübertrager und die Vorhersage von exothermen Vorreaktionen ist daher nur auf Basis der hergeleiteten CFD-Gesamtmodelle möglich.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde auf Basis der hergeleiteten CFD-Modelle die nächste Generation der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung entwickelt:

- Der Wärmeübertrager und Verdampfer des ATR 10 in der Leistungsklasse 10 kW_{el} wurde als vollständig integrierter Rohrwendelwärmeübertrager ausgelegt. Als zweiter Wärmeübertrager wurde ein Luftvorwärmer integriert. Dieser verbessert gleichzeitig die Wärmedämmung des Reaktors.
- Der Wassergas-Shiftreaktor WGS 4 wurde in der Leistungsklasse 10 kW_{el} als *up-scale* des WGS 3 mit einer vereinfachten Geometrie konstruiert.
- Der Wassergas-Shiftreaktor WGS 5 in der Leistungsklasse 50 kW_{el} wurde als kombinierter HTS- und NTS-Reaktor mit einem Mehrdüsenkonzept mit einem Betriebsbereich zwischen 25 % und 120 % ausgelegt. Die Effektivität des Mischkammerdesign liegt bei $\eta_{Mischkammer} = 16$.
- Der katalytische Brenner CAB 3 wurde in der Leistungsklasse 10 kW_{el} auf Basis der Konzepte des CAB 2 mit hemisphärischer Prallfläche konstruiert. Die Wärmeübertragung im Aufsprühbereich der Prallfläche wurde dabei durch ein zusätzliches Leitblech im Abgasstrom maximiert.
- Der autotherme Reformer ATR 11 in der Leistungsklasse 10 kW_{el} vereint die Wärmeübertragerkonzepte des CAB 3 und des ATR 9.2. Der Wärmeübertrager kombiniert hierbei vollständig integrierte Rohrwendeln mit einer Einspritzkammer mit hemisphärischer Prallfläche. Die vollständige Integration der Wärmeübertrager erlaubt ein einfacheres und kompakteres Systemdesign. Die pulsierende Einspritzung ermöglicht eine Modulation zwischen 25 % Last und 120 % Last.
- Das Designkonzept des autothermen Reformers ATR 12 in der Leistungsklasse 10 kW_{el} mit pulsierender Einspritzung und vollständig integriertem Ringspaltwärmeübertrager konnte validiert werden. Der Ringspaltwärmeübertrager führt hier zu einem leichteren und kleineren Reaktordesign. Im Vergleich zum ATR 11 kann das Reaktorvolumen bei gleicher Leistungsklasse um etwa 25 % reduziert werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde somit eine vollständige Reaktorgeneration in der Leistungsklasse 10 kW_{el} entwickelt. In der Leistungsklasse 50 kW_{el} wurden ein Wassergas-Shiftreaktor entwickelt und die integrierten Wärmeübertrager im autothermen Reformer ausgelegt. In beiden Leistungsklassen führt die neue Reaktorgeneration zu einer leichteren und kompakteren Bauweise und einer verbesserten Modulierbarkeit des Gesamtsystems.

9.2 Ausblick

Die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten CFD-Modelle basieren auf umfangreichen Laborexperimenten, *post-mortem*-Analysen und Prototypentests der vorangegangenen Reaktorgeneration. Aufgrund der prinzipiellen Ähnlichkeit der Reaktoren sind die hergeleiteten und validierten Modelle und Methoden übertragbar. Generell bedürfen auch die im Rahmen dieser Arbeit simulierten und ausgelegten Reaktoren einer Validierung in umfangreichen Prototypentests. Hierzu ist der experimentelle Betrieb der Komponenten in Komponententestständen und im Gesamtsystem vorgesehen. Die Ergebnisse dieser Experimente bilden dabei gleichzeitig die iterative Basis des nächsten Entwicklungsschritts der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung.

In dieser Arbeit wurden vereinfachte CFD-Modelle zur Abbildung der thermischen Wechselwirkungen der chemischen Reaktionen verwendet. Im Rahmen weiterführender Arbeiten bietet sich somit die Weiterentwicklung der CFD-Modellbibliothek zur direkten Einbindung von Reaktionskinetiken an. Dies erfordert eine umfassende experimentelle Datenbasis aus Laborexperimenten und Prototypentests. Das in dieser Arbeit hergeleitete Matlab/Simulink Modell der autothermen Reformer kann dabei als wichtiges Werkzeug zur Untersuchung der komplexen Reaktionsmechanismen der exothermen Vorreaktionen dienen.

Die Reaktorauslegung in dieser Arbeit basiert im Wesentlichen auf der Simulation stationärer und semi-stationärer Betriebspunkte. In weiterführenden Simulations- und Entwicklungsstufen sollte daher ein besonderer Fokus auf der Untersuchung der instationären Betriebspunkte liegen. Erste Arbeiten zu diesem Thema finden im Rahmen von [151] statt. Hier wird das Aufheizverhalten eines *package* sowohl mit Matlab/Simulink Modellen als auch mit der Methode der numerischen Strömungsmechanik untersucht.

Vor dem Hintergrund des geforderten kompakten Systems ist ein leichtes Reaktordesign grundlegend. Hierbei stehen die gewünschten geringen Wandstärken im Reaktor im Gegensatz zur geforderten Festigkeit der drucktragenden Teile. Um ein optimiertes Reaktordesign zu ermöglichen wurden am IEK 3, am Fallbeispiel des autothermen Reformers ATR 11, erste Arbeiten zur Kombination der strömungsmechanischen Modellierung mit einer strukturmechanischen Modellierung der Reaktoren durchgeführt. In zukünftigen Reaktorgenerationen wird die Kombination der beiden Methoden ein gewichtsoptimiertes Design der Reaktoren ermöglichen.

A Anhang zu Kapitel 4

A.1 Designübersicht der autothermen Reformer ATR-5 bis ATR-9

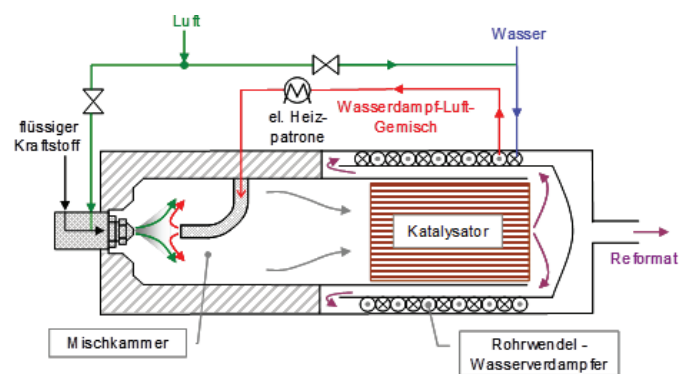


Abb. A.1: Schematischer Aufbau des autothermen Reformers ATR-5 [81]

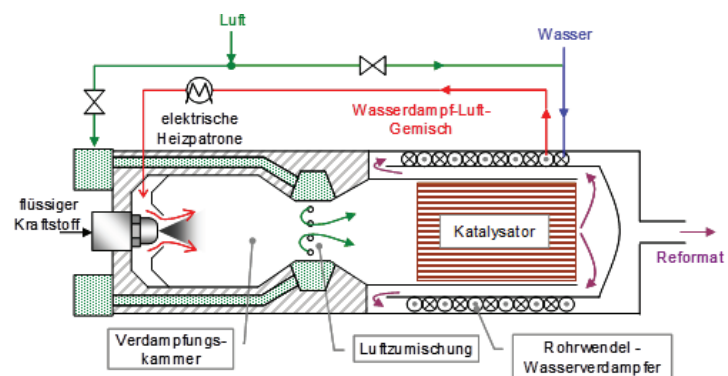


Abb. A.2: Schematischer Aufbau des autothermen Reformers ATR-7 [81]

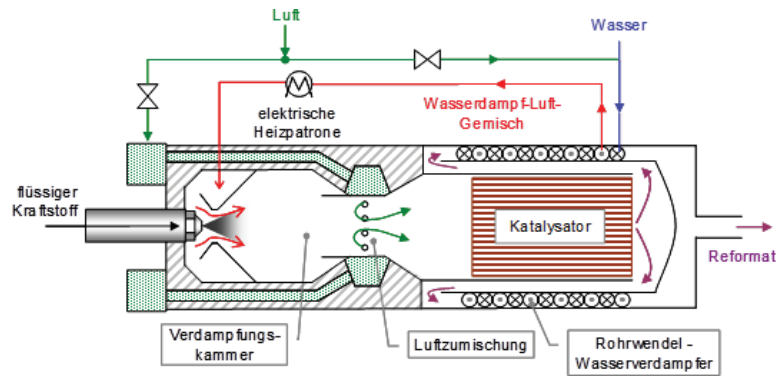


Abb. A.3: Schematischer Aufbau des autothermen Reformers ATR-8 [81]

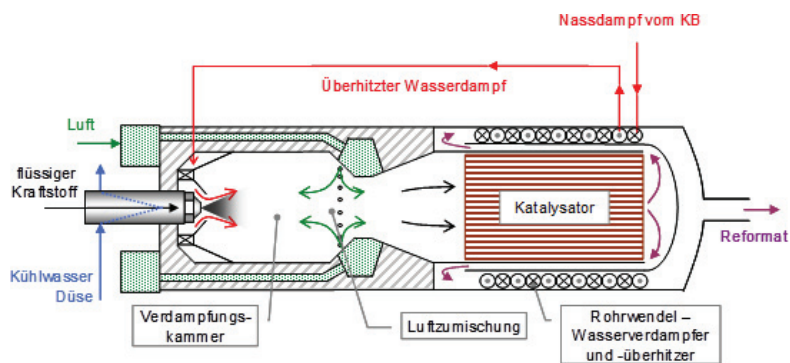


Abb. A.4: Schematischer Aufbau des autothermen Reformers ATR-9 [81]

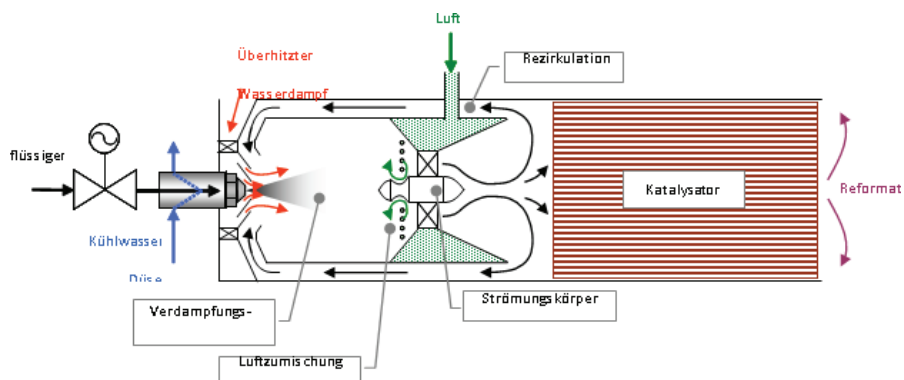


Abb. A.5: Schematischer Aufbau der Mischkammer des autothermen Reformers ATR-10

A.2 CFD-Simulationen des WGS-4

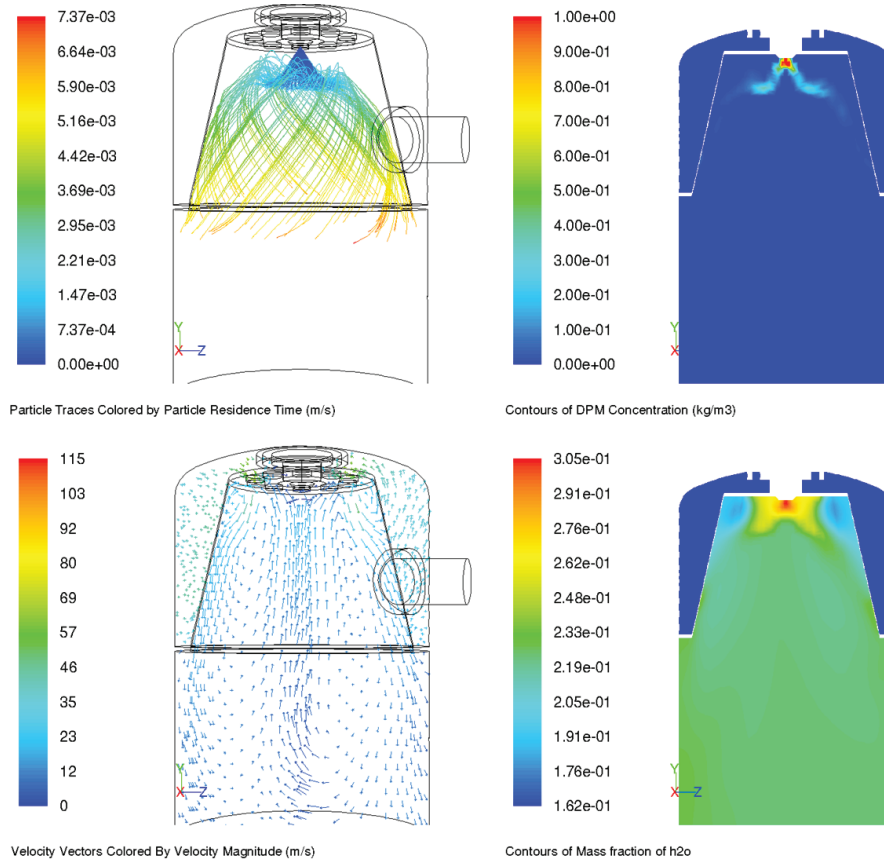


Abb. A.6: Designkonzept der Quenschkammer des Wassergas-Shiftreaktors WGS 4

A.3 Netzabhängigkeit der CFD-Simulationen

Die Abbildungen A.7 bis A.10 zeigen qualitativ das simulierte Temperaturprofil in der Mischkammer des autothermen Reformers ATR-9.2 bei unterschiedlichen Netzqualitäten und ansonsten identischen Modelleinstellungen. Die Vernetzungen der Modelle in den Abbildungen A.7 bis A.9 wurden dabei mit ANSYS-Meshing mit der Funktion „Nachbarschaft und Krümmung“ bei einer Mindestanzahl von drei Zellen über einen kleinen Spalt erstellt. Die dargestellten Netzfeinheiten entsprechen dabei den Stufen „grob“, „mittel“ und „fein“ der Vernetzung. Die Vernetzung in Abbildung A.10 wurde mit dem CFD-*pre-processor* GAMBIT erstellt. Die vier dargestellten Temperaturverläufe zeigen in A.9 und A.10 ein qualitativ gleiches Strömungsverhalten in den Bereichen der Eduktzuführung und der Gemischbildung. Das abweichende Temperaturprofil im mittleren Bereich der Verdampfungskammer resultiert aus dem instationären Verhalten des Tropfensprays. Aus der dargestellten Analyse ergibt sich eine erforderliche Netzfeinheit der CFD-Simulationen gemäß Abbildung A.9.



Abb. A.7: Qualitatives Temperaturprofil in der Mischkammer des ATR 9.2 bei Vernetzung mit 118124 FV



Abb. A.8: Qualitatives Temperaturprofil in der Mischkammer des ATR 9.2 bei Vernetzung mit 474023 FV



Abb. A.9: Qualitatives Temperaturprofil in der Mischkammer des ATR 9.2 bei Vernetzung mit 1030413 FV



Abb. A.10: Qualitatives Temperaturprofil in der Mischkammer des ATR 9.2 bei Vernetzung mit 1815018 FV

B Anhang zu Kapitel 5

B.1 Stoffwerte des Kerosin-Modellkraftstoffs

Viskosität nach [126]

$$\frac{\mu_{liq}(T)}{\frac{kg}{ms}} = A \cdot \rho^{\frac{1}{3}} \cdot e^{\frac{C \cdot \rho_{liq}}{T}} \quad (B.1)$$

Tabelle B.1: Modellparameter zur Viskositätsberechnung von Kerosin Jet A-1 nach [126]

Temperaturbereich	A	C
$T \geq 310,93K$	$5,922965 \cdot 10^{-6}$	1,165926
$T \leq 310,93K$	$2,196641 \cdot 10^{-6}$	1,555332

Oberflächenspannung nach [126]

$$\frac{\sigma(T)}{\frac{N}{m}} = 1,550388 \cdot 10^{-5} \cdot (684,26 - T)^{1,222222} \quad (B.2)$$

Destillationskurve nach [126]

$$\frac{T_S}{K} = a_1 + a_2 \cdot x_{evap} + a_3 \cdot x_{evap}^2 + a_4 \cdot x_{evap}^3 \quad (B.3)$$

Tabelle B.2: Modellparameter zur Berechnung der Destillationskurve von Kerosin Jet A-1 nach [126]

Temperaturbereich	A	B	aC
$T_S < 477,95 K$	20,4274903	3877,38996	43
$T_S > 477,95 K$	21,3176792	4264,57762	43

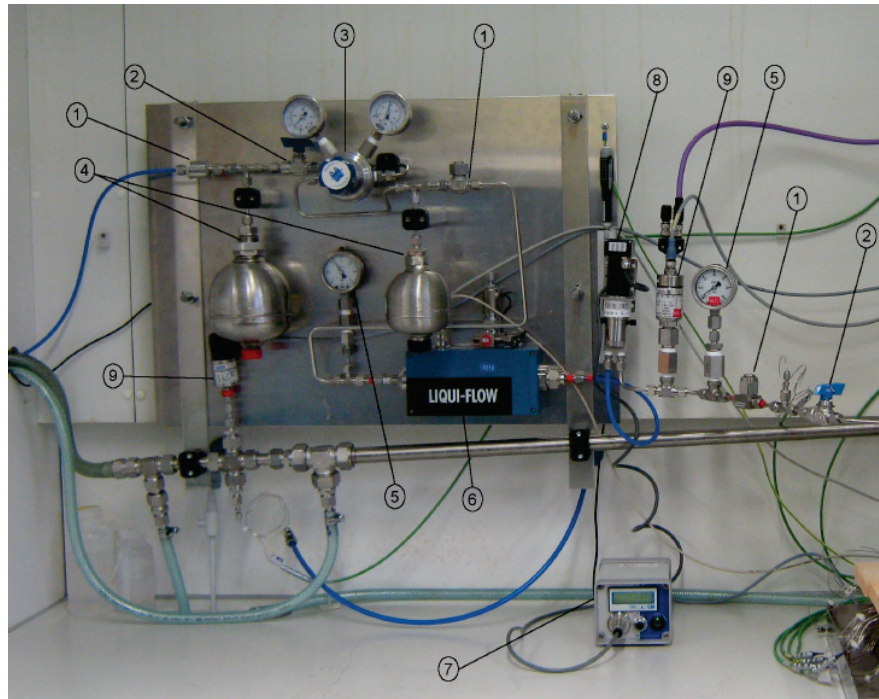
Dampfdruck nach [126]

$$\frac{p_S(T_S)}{bar} = e^{A - \frac{B}{T_S - C}} \quad (B.4)$$

Tabelle B.3: Modellparameter zur Berechnung des Dampfdrucks von Kerosin Jet A-1 nach [126]

Temperaturbereich	a_1	a_2	a_3	a_4
$0,0 < x_{evap} \leq 0,2$	$4,3515000 \cdot 10^2$	$2,4441883 \cdot 10^2$	$-8,9128251 \cdot 10^2$	$1,4709417 \cdot 10^3$
$0,2 < x_{evap} \leq 0,5$	$4,4678156 \cdot 10^2$	$6,9945495 \cdot 10^1$	$-1,8915813 \cdot 10^1$	$1,6997198 \cdot 10^1$
$0,5 < x_{evap} \leq 0,7$	$4,4529239 \cdot 10^2$	$7,8880516 \cdot 10^1$	$-3,6785855 \cdot 10^1$	$2,8910559 \cdot 10^1$
$0,7 < x_{evap} \leq 1,0$	$2,0579716 \cdot 10^2$	$1,1052886 \cdot 10^3$	$-1,5030831 \cdot 10^3$	$7,2714736 \cdot 10^2$

B.2 Versuchsaufbau des Düsenteststands



- | | | |
|----------------------------|-----------------------|-------------------------------|
| 1: Filter | 2: Absperrhahn | 3: Reduzierventil |
| 4: Druckausgleichsbehälter | 5: mech. Druckmesser | 6: Durchflussmessgerät |
| 7: Pumpensteuerung | 8: Mikrozahnringpumpe | 9: elektronischer Druckmesser |

Abb. B.1: Versuchsaufbau des Düsenteststands [157]

B.3 Versuchsaufbau der Strömungsvisualisierungsexperimente

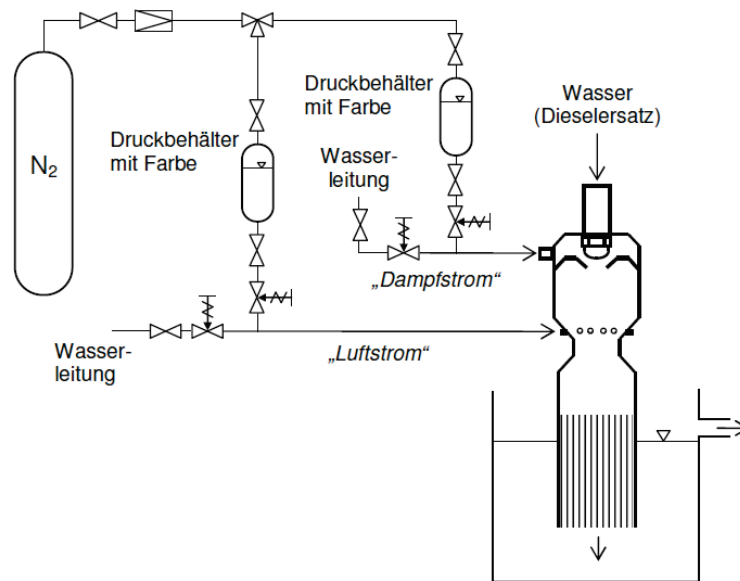


Abb. B.2: Versuchsaufbau der Strömungsvisualisierungsversuche [134]

B.4 Pulsierende Einspritzung bei 100 % Last

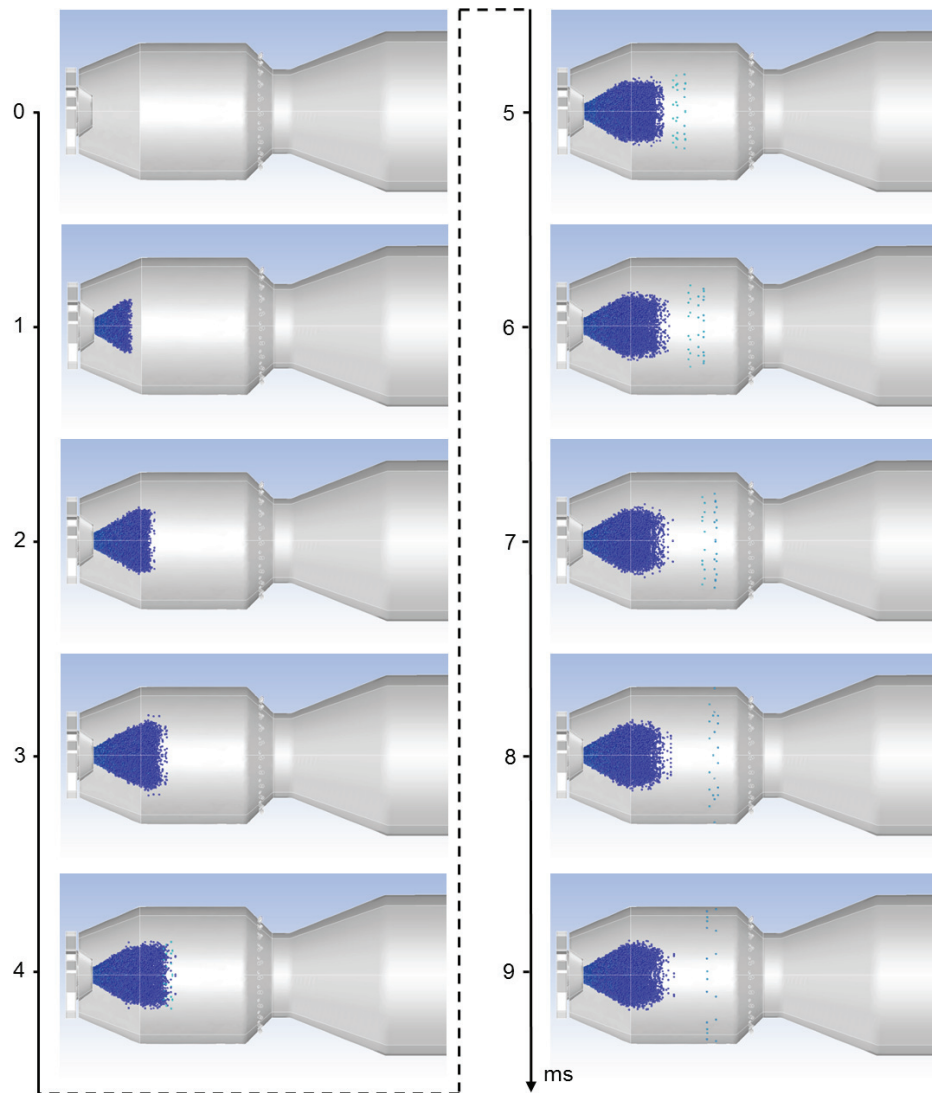


Abb. B.3: Modellierter Verlauf des Aufbaus des Sprühbildes bei pulsierender Einspritzung, Pulsbeginn zum Zeitpunkt $t = 0$

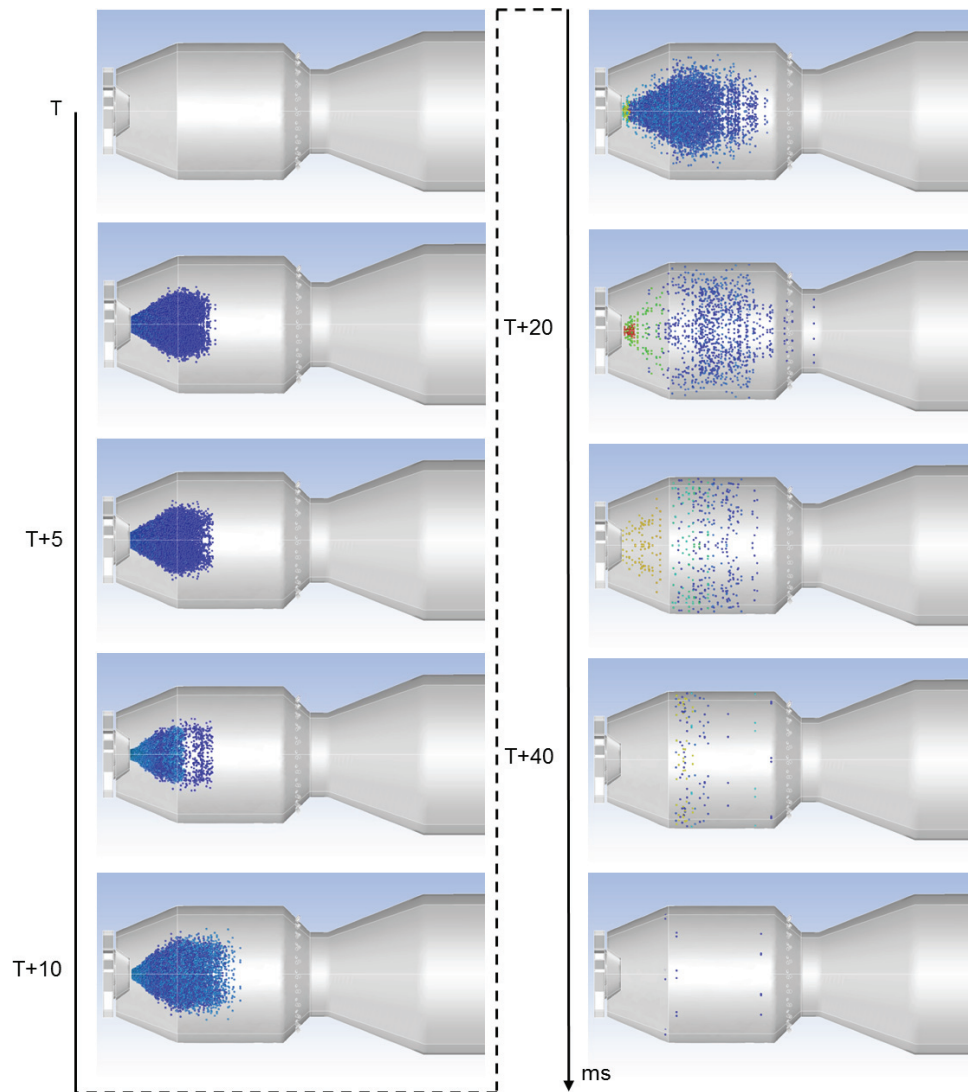


Abb. B.4: Modellierter Verlauf des Zusammenbruchs des Sprühbildes bei pulsierender Einspritzung, Pulsende zum Zeitpunkt $t = T$

C Anhang zu Kapitel 6

C.1 Versuchsaufbau Druckverlustmessungen

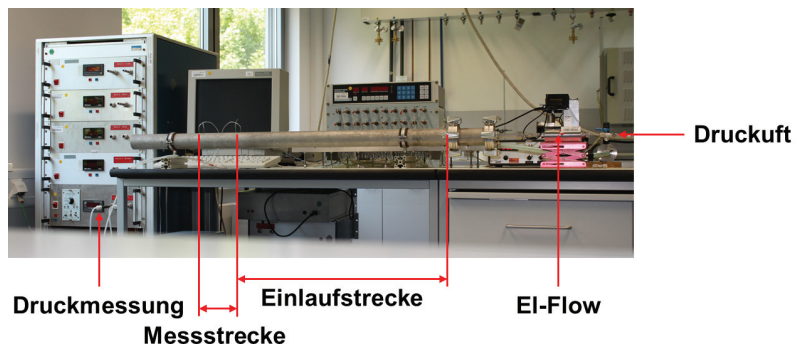


Abb. C.1: Versuchsaufbau der Druckverlustmessungen

C.2 WGS-Reaktionsmechanismus

Nach Gleichung (2.15) und (6.2) ergibt sich für die Reaktionsgeschwindigkeit der Wassergas-Shiftreaktion mit der Gleichgewichtskonstanten K :

$$R = k \cdot \left(C_{CO} \cdot C_{H_2O} - \frac{C_{CO_2} \cdot C_{H_2}}{K} \right) \quad (C.1)$$

Das FLUENT Modell zur Beschreibung von Oberflächenreaktionen berücksichtigt keinen Gleichgewichtsreaktionen. Daher wurde der Modellansatz nach Gleichung (3.31) in einer UDF implementiert und um die temperaturabhängige Gleichgewichtskonstante als zusätzlichen Faktor erweitert. Aus Gleichung (C.1) ergeben sich die Reaktionsgeschwindigkeiten für die Hin- und die Rückreaktion zu:

$$R_{Hin} = k \cdot (C_{CO} \cdot C_{H_2O}) \quad (C.2)$$

$$R_{Rueck} = k \cdot \left(\frac{C_{CO_2} \cdot C_{H_2}}{K} \right) \quad (C.3)$$

C.3 Verweilzeitverhalten bei 25 % Last

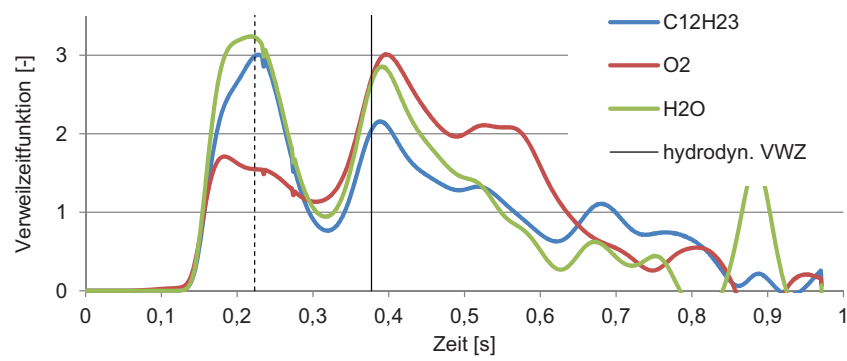


Abb. C.2: Verweilzeitverteilung der Edukte in der Mischkammer des ATR 9.2 bei 25 % Last

C.4 Fehlerrechnung: VWZ-Summenkurven

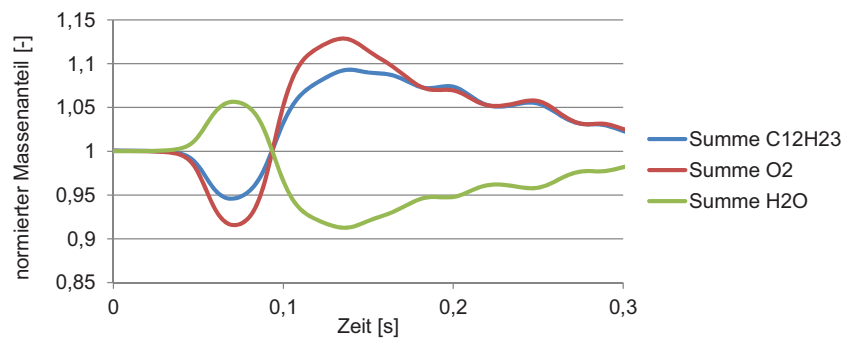


Abb. C.3: Abschätzung des numerischen Fehlers anhand der Summenkurven der Übergangsfunktionen in der Mischkammer des ATR-9.2 im Auslegungspunkt

C.5 Matlab/Simulink Modell

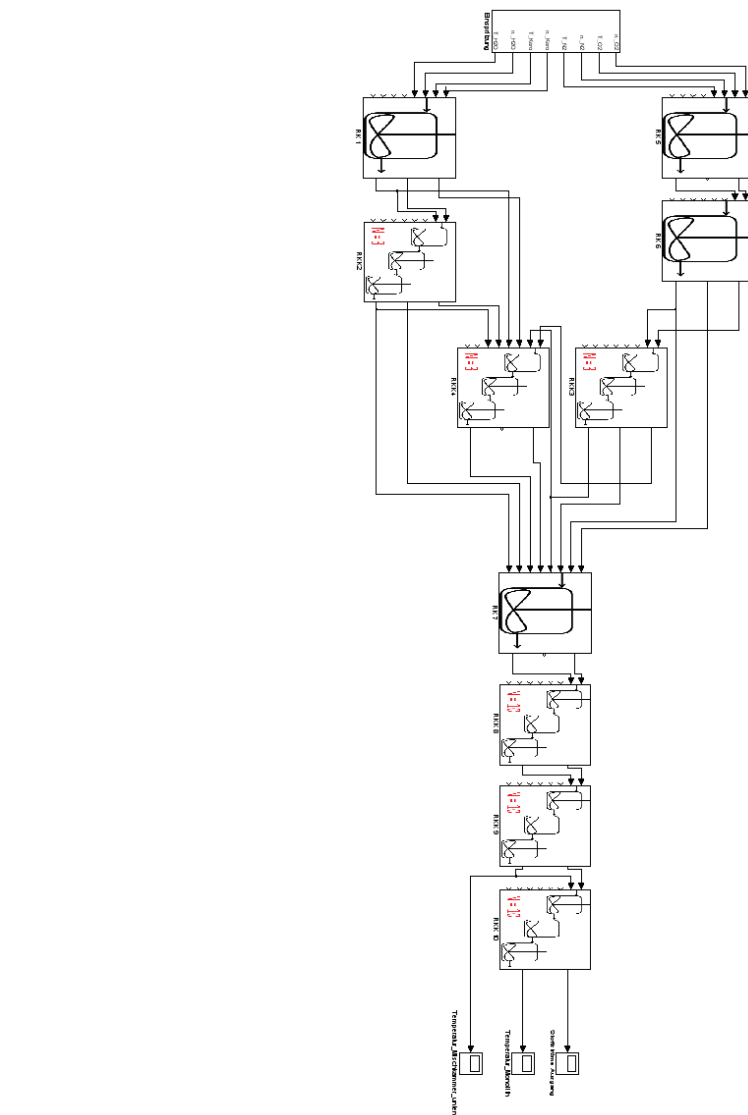


Abb. C.4: Matlab/Simulink-Modell der Mischkammer des ATR-9.2 als Verschaltung idealer Reaktoren [153]

Nomenklatur

Abkürzungen

APU	<i>auxiliary power unit</i> , Hilfsaggregat
ATR	autothermer Reformer
BGS	Brenngaserzeugungssystem
CAB	<i>catalytic burner</i> , katalytischer Brenner
CFD	<i>computaional fluid dynamics</i> , Numerische Strömungsmechanik
CHF	<i>critical heat flux</i> , kritische Wärmestromdichte
DO-Modell	<i>discrete-ordinates model</i> , diskrete Ordinaten Methode
DPM	<i>discrete phase model</i> , diskrete Phasen Modell
fps	<i>frames per second</i>
GHSV	<i>gas hourly space velocity</i> , Raumgeschwindigkeit
HPC	<i>high performance computer</i> , Hochleistungsrechner
HTS	Hochtemperatur-Wassergas-Shiftreaktion
LES	<i>large eddy simulation</i> , Grobstruktursimulation
LF	Leidenfrostpunkt
NTC	negativer Temperaturkoeffizient
NTS	Niedertemperatur-Wassergas-Shiftreaktion
ONB	<i>onset of nucleate boiling</i> , Startpunkt des Blasensiedens
PEFC	<i>polymer electrolyte fuel cell</i> , Polymerelektrolytbrennstoffzelle
POX	<i>partial oxidation</i> , partielle Oxidation
RANS	<i>reynolds-averaged Navier-Stokes</i>
RTE	<i>radiative transfer equation</i> , Strahlungsübertragungsgleichung
SOFC	<i>solide oxide fuel cell</i> , Festoxidbrennstoffzelle
SR	<i>steam reforming</i> , Dampfreformierung
THG	Treibhausgas
VOF-Modell	<i>volume of fluid</i> -Modell
WGS	Wassergas-Shiftreaktor
XtL	synthetische Kraftstoffe, Fischer-Tropsch-Kraftstoffe

Dimensionslose Kennzahlen

$Nu = \frac{\alpha \cdot d}{\lambda}$	Nusselt-Zahl
$Oh = \frac{\eta}{\sqrt{L \cdot \rho \cdot \sigma}} = \frac{\sqrt{We}}{Re}$..	Ohnesorge-Zahl
$Pr = \frac{c_p \cdot \eta}{\lambda}$	Prandtl-Zahl
$Re = \frac{\rho \cdot v \cdot d}{\eta}$	Reynolds-Zahl

$SC = \frac{\nu}{D}$	Schmidt-Zahl
$We = \frac{\rho \cdot v^2 \cdot L}{\sigma}$	Weber-Zahl
y^+	dimensionslose Wandabstand

Griechische Formelzeichen

α	Wärmeübergangskoeffizient	$[W/m^2/K]$
β	Temperaturabhängigkeit des präexponentiellen Faktors	
ϵ_v	Verdampfungseffektivität	
η	dynamische Viskosität	$[kg/m/s]$
η_i	Exponent der Reaktionsordnung	
γ	Porosität	
λ	Luftzahl	
λ	Wärmeleitfähigkeit	$[W/m/K]$
ν	kinematische Viskosität	$[m^2/s]$
ν_i	Stöchiometrikoeffizient	
ρ	Dichte	$[kg/m^3]$
σ	Oberflächenspannung	$[N/m]$
τ	Verweilzeit	$[s]$
θ	Bedeckungsgrad	
v	Strömungsgeschwindigkeit	$[m/s]$

Indizes

*	Radikal
'	Edukte
''	Produkte
D	Düse
r	Reaktion
Tr	Tropfen
V	Verdampfung
W	Windung, Wand

Lateinische Formelzeichen

$\Delta H_{R,298}^0$	Reaktionsenthalpie	$[J/mol]$
\dot{x}	Strömungsdampfgehalt	
ϑ	Temperatur	$[^\circ C]$
A_r	<i>pre-exponential factor</i>	
C_i	Konzentration der Komponente i	$[mol/m^3]$
c_p	isobare Wärmekapazität	$[J/kg/K]$
D	Diffusionskoeffizient	$[m^2/s]$
d_{32}	Sauterdurchmesser	$[m]$

D.1. Versuchsaufbau der Verdampfungsversuche

d, D	Durchmesser	[m]
E _A	Aktivierungsenergie	[J/mol]
h	Enthalpie	[J]
k _r	Reaktionsgeschwindigkeitskonstante	
L	charakteristische Länge	[m]
m	Masse	[kg]
N	Anzahl der Reaktanden	
p	Druck	[Pa]
Q	Wärmemenge	[J]
q	Wärmestromdichte	[W/m ²]
R _i	Reaktionsgeschwindigkeit der Komponente i	[mol/m ³ /s]
S	Fläche	[m ²]
T	Temperatur	[K]
u	Geschwindigkeit	[m/s]
V	Volumen	[m ³]

Physikalische Konstanten

σ	Stefan-Boltzmann-Konstante
R	universelle Gaskonstante

Abbildungsverzeichnis

1.1	Zieldreieck einer zukünftigen Energieversorgung	2
1.2	Charakteristische Aufbau chemischer Reaktoren	5
1.3	Konzept der CFD-basierten Reaktorentwicklung [17]	7
2.1	Reaktionsbereich der kalten Flamme bei $p = 1$ bar und $\lambda = 1$ [25], [26]	12
2.2	Schematisches Stabilitätsdiagramm des Systems Heizöl - vorgewärmte Luft [27]	12
2.3	Temperaturabhängigkeit der Produktzusammensetzung bei der beheizten Dampfreformierung von Dieselmotorkraftstoff [30]	14
2.4	Zusammensetzung des Produkts der beheizten Dampfreformierung von Dieselmotorkraftstoff in Abhängigkeit vom $n(H_2O)/n(C)$ -Verhältnis [30]	14
2.5	Partielle Oxidation von Dieselmotorkraftstoff, Produktzusammensetzung in Abhängigkeit von der Luftzahl λ [30]	15
2.6	Autotherme Reformierung von Dieselmotorkraftstoff mit Wasserdampf, Start bei 500 °C, Produktzusammensetzung in Abhängigkeit von der zugeführten Wassermenge [30]	15
2.7	Gleichgewichtslage und angepasste S-Kurven für ein ideales Strömungsrohr bei unterschiedlichen Raumgeschwindigkeiten /GHSV) in Abhängigkeit von der Temperatur (nach [33])	16
2.8	Reaktionsverlauf einer katalytischen Oberflächenreaktion im Vergleich zur Reaktion ohne Katalysator [35]	19
2.9	Einfluss der Temperatur auf die Reaktionsgeschwindigkeit [36]	19
2.10	Reaktionsgeschwindigkeit katalytischer Oberflächenreaktionen nach Langmuir-Hinshelwood und Eley-Rideal [35]	20
2.11	BGS HT-PEFC Verfahrensfließbild	23
2.12	Schematische Darstellung der Reaktoren der Brenngaserzeugung, (a) Autothermer Reformer, (b) Katalytischer Brenner, (c) Shiftreaktoren	25
2.13	Funktionsprinzip einer Dralldruckdüse [42]	26
2.14	Zerfallsmechanismen beim Lamellenzerfall [43] a) Randwulst Kontraktion; b) Aerodynamisches Zerwellen; c) Turbulenter Lamellenzerfall	26
2.15	Nukiyama-Diagramm: Wärmestromdichte über der Temperaturdifferenz zwischen Wand und Fluid [47], [48]	28
2.16	Verhältnis von realem und thermodynamischem Strömungsdampfgehalt [50]	31
2.17	Strömungsformenkarte vertikales Rohr [51]	32
2.18	Strömungsformenkarte horizontales Rohr [51]	33
2.19	Strömungs- und Wärmeübergangsphänomene in einem vertikalen, nach oben durchströmten Rohr [51], [50], [52]	34
2.20	Strömungs- und Wärmeübergangsphänomene in einer Rohrwendel [50], [53]	38

2.21	Wärmeübergangskoeffizient in Abhängigkeit des Strömungsdampfgehalts für ein gerades Rohr, eine Rohrwendel und einen Ringspalt, nach [50]	40
2.22	Tropfen-Wand Wechselwirkungen und die sich daraus ergebenden Verläufe der Verdampfungszeit und der Nukiyama-Kurve in Abhängigkeit der Wandtemperatur und der Weberzahl [47], [54]	41
5.1	Sättigungsdampfdruck von Kerosin in Abhängigkeit der Temperatur, nach [125, 126]	77
5.2	Destillationskurve von Kerosin, nach [125, 126]	77
5.3	Durchsatz und Sprühbild vierer baugleicher Dralldruckdüsen mit einem Öffnungsdurchmesser von 0,2 mm	78
5.4	REM-Aufnahmen zur Fehleranalyse in Dralldruckdüsen, Aufsicht der Düsenöffnung und des Düsenstocks bei Dralldruckdüsen mit einem Öffnungsdurchmesser von 0,1 mm (links) und 0,15 mm (rechts)	81
5.5	Design der Quenchstufe des Wassergas-Shiftreaktors WGS 5 in den Varianten V1 bis V3	83
5.6	Güte der Gemischbildung in der Quenchstufe des WGS 5 in den Varianten V1 bis V3	84
5.7	Strömungsprofil und Konzentrationsverlauf in der Quenchstufe des WGS 5, Farbskala: molare H_2O -Konzentration in $[kmol/m^3]$	86
5.8	Konzentrationsprofil der Wassertropfen in der Quenchstufe des WGS 5, Farbskala: DPM-Konzentration in $[kg/m^3]$	86
5.9	Güte der Gemischbildung in der Quenchstufe des WGS 5 V3 bei 25 % Last, 100 % Last und 120 % Last	87
5.10	Experimentell und simulativ ermittelte Verweilzeitsummenkurven von Wasser und Luft in der Mischkammer des ATR 8	88
5.11	Experimentell und simulativ ermitteltes instationäres Strömungsverhalten in der Mischkammer des ATR 10	89
5.12	Hochgeschwindigkeitsanalyse des Aufbaus des Sprühbildes bei pulsierender Einspritzung, Pulsbeginn zum Zeitpunkt $t = 0$	91
5.13	Hochgeschwindigkeitsanalyse des Zusammenbruchs des Sprühbildes bei pulsierender Einspritzung Pulsende zum Zeitpunkt t	92
5.14	Fortsetzung der Hochgeschwindigkeitsanalyse des Zusammenbruchs des Sprühbildes bei pulsierender Einspritzung Pulsende zum Zeitpunkt t	93
5.15	Normierte Verläufe der Einspritzung, der Verdampfung und der Massenanteile am Monolitseintritt für 25 % Last und 100 % Last im ATR 11, Simulationsergebnis für eine Taktfrequenz von 10 Hz und eine Pulsweite von 50 ms	95
5.16	Modellierter Verlauf des Aufbaus des Sprühbildes bei pulsierender Einspritzung, Pulsbeginn zum Zeitpunkt $t = 0$	97
5.17	Modellierter Verlauf des Zusammenbruchs des Sprühbildes bei pulsierender Einspritzung, Pulsende zum Zeitpunkt $t = T$	98
5.18	Fortsetzung des modellierten Verlaufs des Zusammenbruchs des Sprühbildes bei pulsierender Einspritzung, Pulsende zum Zeitpunkt $t = T$	99

6.1	Instationärer Temperaturverlauf der exothermen Vorreaktion im Monolithvorlauf der Reaktoren ATR 9.1 und ATR 9.2 [137]	106
6.2	Temperaturverlauf im katalytischen Brenner CAB 2.3 in Abhängigkeit von der Luftzahl [139]	108
6.3	Modellierte Verläufe der Abgastemperatur und der Abgaszusammensetzung im katalytischen Brenner	112
6.4	Verweilzeitverteilung der Edukte in der Mischkammer des ATR 9.2 im Auslegungspunkt	117
6.5	Aufteilung der Mischkammer des ATR 9.2 in ideale Reaktoren [153]	118
6.6	Validierung der Matlab/Simulink-Modellierung des Verweilzeitverhaltens [153]	120
6.7	Validierung der Modellreaktionen der exothermen Vorreaktionen anhand der Produkttemperatur und des qualitativen Verlaufs für Heizöl [26]	121
6.8	Temperaturprofil in der Mischkammer des ATR 9.2 ohne exotherme Vorreaktionen und unter Berücksichtigung der diskutierten Reaktionsmodelle, Verlauf der Reaktionsrate der exothermen Vorreaktion im erweiterten Modell	123
6.9	Temperaturprofil im Monolithvorlauf des ATR 9.2 ohne exotherme Vorreaktionen (links), mit exothermer Vorreaktion ohne Selbstzündung (mitte) und mit exothermer Vorreaktion und Selbstzündung (rechts)	124
7.1	Übertragener Wärmestrom in Abhängigkeit von der effektiven Oberflächentemperatur und der Wasserbeaufschlagungsdichte	127
7.2	Sprühbilder und daraus resultierende effektive Wechselwirkungsflächen bei einem Wasserbeaufschlagungsdichte von 0,4 kg/m ² /s und einer Oberflächentemperatur von 200 °C (links), 300 °C (mitte) und 400 °C (rechts)	128
7.3	Übertragene Wärmestromdichten in Abhängigkeit der effektiven Oberflächentemperatur und der Wasserbeaufschlagungsdichte	129
7.4	Instationärer Abkühlverlauf von 700 °C bei einer Wasserbeaufschlagungsdichte von 0,4 kg/m ² /s, in Bezug auf die gesamte Plattenoberfläche (blau) und auf die Aufsprühfläche (rot)	130
7.5	Auf Basis der stationären und instationären Experimente berechnete Wärmeübergangskoeffizienten [158]	131
7.6	Vergleich der experimentell ermittelten Wärmestromdichten mit CFD-Simulationen bei unterschiedlichen Wechselwirkungsmodellen und dem qualitativen Verlauf der Nukiyamakurve für Behältersieden, Wasserbeaufschlagungsdichte im Bereich 0,4 kg/m ² /s	133
7.7	Verdampfungseffektivität in Abhängigkeit von der effektiven Oberflächentemperatur und der Wasserbeaufschlagungsdichte, in Bezug auf die gesamte Wechselwirkungsfläche (leere Symbole) und auf die Auftrefffläche (gefüllte Symbole)	134
7.8	Temperaturverlauf bei Wasserbeaufschlagung im Querschnitt der Platte, ohne (links) und mit (rechts) porösem Körper	136
7.9	Strömungsverhalten des eingefärbten Tropfensprays unterhalb (links) und oberhalb (rechts) des Leidenfrostpunktes etwa 0,1 s nach Beginn der Einspritzung	137

7.10	Charakteristische Zusammenhänge des verdampften Massenstroms, der effektiven Oberflächentemperatur und der Wasserbeaufschlagungsdichte beim Sieden eines Tropfensprays auf einer Hemisphäre	138
7.11	Post-mortem Analyse der Aufsprühfläche (links) und der Aussenhülle eines CAB 2.1 nach Betrieb (rechts), charakteristische Anlassfarben für Stahl [166]	139
7.12	Temperaturverläufe an charakteristischen Punkten im CAB 2.1 und im CAB 2.2	140
7.13	Abfließen des Wasserfilms bei 30 ° Auslenkung für unterschiedliche Oberflächen-geometrien, Farben nach Phasenanteil Dampf im VOF-Modell [168]	142
7.14	Modellierter Temperaturverlauf in [°C] sowie Strömungsbild und Sprühbild in [m/s] im CAB 3	143
7.15	Iterative Methodik der vereinfachten 2D Modellierung von Rohrwendel- (links) und Ringspaltwärmetauschern (rechts)	145
7.16	Vergleich der modellierten und der experimentell ermittelten Temperaturverläufe im Wärmetauscher des ATR 8-V2, Farbverlauf: Temperatur in [°C]	146
7.17	Konzept des Rohrwendelwärmetauscher im ATR 10 mit einem Rohrwendelbündel aus 6 einzelnen Wendeln	147
7.18	Temperaturverläufe im modellierten ATR 10-Wärmetauscher bei 100 % Last und 50 % Dampfgehalt (durchgezogene Linie: äußerer Ringspalt, gestrichelte Linie: innerer Ringspalt) sowie Verhalten der charakteristischen Temperaturen bei Variation der Betriebsparameter (leere Symbole)	148
7.19	Temperaturprofil im ATR 10 für unterschiedliche Dämmkonzepte sowie Temperaturverlauf im Konzept mit Luftvorwärmer, Farbverlauf: Temperatur in [°C]	149
7.20	Temperaturprofil im zusammengesetzten Gesamtmodell des ATR 10, Farbverlauf: Temperatur in [°C] [17]	150
7.21	Simulierter Temperaturverlauf sowie Strömungsbild und Sprühbild im ATR 11	151
7.22	Temperaturverläufe im modellierten ATR 11 Wärmetauscher mit <i>wall-jet</i> Randbedingung im Auslegungspunkt sowie das Verhalten der charakteristischen Temperaturen bei Variation der Betriebsparameter (leere Symbole)	153
8.1	Erster Designentwurf des ATR 12 als 2D-Modell sowie als 3D-Modelle in Ausschnitten von 30° und 60°	160
8.2	Temperaturprofil und Tropfenverteilung im ATR 12 bei 25 % Last	162
8.3	Normierte Verläufe der Einspritzung und der Verdampfung in der Mischkammer, des Gesamtmassenstroms am Monolitteintritt und der Maximaltemperatur im Monolithen im ATR 12 bei 25 % Last im pulsierten Betrieb mit einer Verschlusszeit von 30 ms	163
8.4	Temperaturprofil und Tropfenverteilung im ATR 12 ohne Drahtgestrick im Nassdampf-Ringspalt bei 120 % Last	164
8.5	Temperaturprofil und Tropfenverteilung im ATR 12 mit Drahtgestrick im Nassdampf-Ringspalt bei 120 % Last	164
8.6	Dreidimensional simuliertes Temperaturprofil und Tropfenverteilung im ATR 12 mit Drahtgestrick im Nassdampf-Ringspalt bei 120 % Last	166

A.1	Schematischer Aufbau des autothermen Reformers ATR-5 [81]	177
A.2	Schematischer Aufbau des autothermen Reformers ATR-7 [81]	177
A.3	Schematischer Aufbau des autothermen Reformers ATR-8 [81]	178
A.4	Schematischer Aufbau des autothermen Reformers ATR-9 [81]	178
A.5	Schematischer Aufbau der Mischkammer des autothermen Reformers ATR-10	178
A.6	Designkonzept der Quenschkammer des Wassergas-Shiftreaktors WGS 4	179
A.7	Qualitatives Temperaturprofil in der Mischkammer des ATR 9.2 bei Vernetzung mit 118124 FV	180
A.8	Qualitatives Temperaturprofil in der Mischkammer des ATR 9.2 bei Vernetzung mit 474023 FV	180
A.9	Qualitatives Temperaturprofil in der Mischkammer des ATR 9.2 bei Vernetzung mit 1030413 FV	181
A.10	Qualitatives Temperaturprofil in der Mischkammer des ATR 9.2 bei Vernetzung mit 1815018 FV	181
B.1	Versuchsaufbau des Düsenteststands [157]	185
B.2	Versuchsaufbau der Strömungsvisualisierungsversuche [134]	186
B.3	Modellierter Verlauf des Aufbaus des Sprühbildes bei pulsierender Einspritzung, Pulsbeginn zum Zeitpunkt $t = 0$	187
B.4	Modellierter Verlauf des Zusammenbruchs des Sprühbildes bei pulsierender Einspritzung, Pulsende zum Zeitpunkt $t = T$	188
C.1	Versuchsaufbau der Druckverlustmessungen	189
C.2	Verweilzeitverteilung der Edukte in der Mischkammer des ATR 9.2 bei 25 % Last	191
C.3	Abschätzung des numerischen Fehlers anhand der Summenkurven der Übergangsfunktionen in der Mischkammer des ATR-9.2 im Auslegungspunkt	192
C.4	Matlab/Simulink-Modell der Mischkammer des ATR-9.2 als Verschaltung idealer Reaktoren [153]	193
D.1	RI-Schaltbild des Versuchsaufbaus der Verdampfungsversuche	195

Tabellenverzeichnis

1.1	Emissionssenkungen einzelner Sektoren nach [8]	4
2.1	Spezifikationen für Kerosin (Jet A-1) und Diesel	22
4.1	Entwicklungshistorie und -strategie der autothermen Refomer für eine HT-PEFC APU [16, 41, 80, 81]	64
4.2	Entwicklungshistorie und -strategie der Wassergas-Shiftreaktoren ab 2005	65
4.3	Entwicklungshistorie und -strategie der katalytischen Brenner ab 2005 [83]	65
4.4	Volumenströme der Einspritzsysteme in den Kernkomponenten der Brenngaserzeugung	67
4.5	Kriterienkatalog zur Düsenwahl [43–45, 85–91]	68
4.6	Standardmodelle der CFD-Simulationen	73
5.1	Instationäre Sprayparameter einer pulsierenden Einspritzung für eine Drall-druckdüse mit einer Öffnungsgröße von 0,15 mm	94
6.1	Ergebnisse des Faktorstufentests des Prototypen des ATR 9.2 [138]	104
6.2	CFD-Modellparameter der Monolithe	109
6.3	Reaktionsmechanismus der autothermen Reformierung nach [147]	110
6.4	Reaktionsmechanismus der Totaloxidation und der katalytischen Verbrennung nach [125]	111
6.5	Herleitung der Modellparameter der vereinfachten Reaktionsmodellierung im ATR	113
6.6	Modellvalidierung der vereinfachten Reaktionsmodellierung im ATR	115
6.7	Reaktionsmodell der exothermen Vorreaktion mit Selbstzündung [125]	120
B.1	Modellparameter zur Viskositätsberechnung von Kerosin Jet A-1 nach [126]	183
B.2	Modellparameter zur Berechnung der Destillationskurve von Kerosin Jet A-1 nach [126]	183
B.3	Modellparameter zur Berechnung des Dampfdrucks von Kerosin Jet A-1 nach [126]	184

Literaturverzeichnis

- [1] BP. BP Statistical review of World Energy, 2011. http://www.bp.com/assets/bp_internet/globalbp/globalbp_uk_english/reports_and_publications/statistical_energy_review_2011/STAGING/local_assets/pdf/statistical_review_of_world_energy_full_report_2011.pdf, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [2] Arbeitsgruppe Energierohstoffe, BMWI, Abteilung III. Verfügbarkeit und Versorgung mit Energierohstoffen, 2006. <http://www.bmwi.de/BMWi/Redaktion/PDF/E/energierohstoffbericht.pdf>, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [3] IPCC. Special Report on Renewable Energy Sources and Climate Change Mitigation, 2011. <http://srren.ipcc-wg3.de/report>, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [4] N. H. Stern. Stern Review on the Economics of Climate Change, 2006. http://webarchive.nationalarchives.gov.uk/+http://www.hm-treasury.gov.uk/sternreview_index.htm, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [5] UN. World Population Prospect, the 2010 Revision, 2011. <http://esa.un.org/unpd/wpp/index.htm>, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [6] IEA. World Energy Outlook 2007, China and India Insight, 2007. <http://www.worldenergyoutlook.org/2007.asp>, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [7] IEA. World Energy Outlook, 2010. <http://www.worldenergyoutlook.org/2009.asp>, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [8] Publications Office of the European Union. Energy 2020, A strategy for competitive, sustainable and secure energy, 2011. http://ec.europa.eu/energy/strategies/2010/2020_en.htm, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [9] UNFCCC. Summary of GHG Emissions for European Union (27), 2010. http://unfccc.int/files/ghg_data/ghg_data_unfccc/ghg_profiles/application/pdf/eu-27_ghg_profile.pdf, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [10] Umweltbundesamt. Schaubilder zur Entwicklung der energiebedingten Emissionen in Deutschland 1999 - 2007, 2007. http://www.umweltbundesamt.de/energie/archiv/schaubilder_energiebedingte_emissionen.pdf, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [11] IEA. Transport Energy and CO₂, Moving Toward Sustainability, 2009. <http://www.iea.org/textbase/nppdf/free/2009/transport2009.pdf>, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [12] BMWI. Nationaler Entwicklungsplan Elektromobilität der Bundesregierung, 2009. <http://www.bmwi.de/Dateien/BMWi/PDF/>

- nationaler-entwicklungsplan-elektromobilitaet-der-bundesregierung.pdf.
- [13] D. Stolten. Brennstoffzellen für mobile Anwendungen - Wo stehen wir auf diesem Weg? In *Energie, Technologien für die Zukunft, AKE Tagungsband der DPG-Frühjahrstagung Bonn 2010*, 2010. http://www.uni-saarland.de/fak7/fze/AKE_Archiv/DPG2010-AKE_Bonn/Buch/DPG2010_AKE4.1_Stolten.pdf.
 - [14] T. Grube, R. Menzer, R. C. Samsun, J. Pasel, R. Peters. Optionen und Herausforderungen des Einsatzes von Auxiliary Power Units in mobilen Anwendungen. *VDI Berichte* **1975**, 488 – 528, 2006.
 - [15] R. Peters. *Hydrogen and Fuel Cells*, chapter Auxiliary Power Units for Light-Duty Vehicles, Trucks, Ships and Airplanes, pages 681–714. Wiley-VCH, 2010.
 - [16] Z. Porš. *Eduktvorbereitung und Gemischbildung in Reaktionsapparaten zur autothermen Reformierung von dieselähnlichen Kraftstoffen*. Forschungszentrum Jülich, 2006. Erschienen unter Schriften des Forschungszentrums Jülich - Reihe Energietechnik, Band/Volume 49.
 - [17] R. Peters, F. Scharf. *Fuel Cell Science and Engineering*, chapter CFD-Simulation Using Supercomputer Calculation Capacity. Wiley-VCH, 2012.
 - [18] A. Bendzulla. *Von der Komponente zum Stack: Entwicklung und Auslegung von HT-PEFC-Stacks der 5 kW-Klasse*. Forschungszentrum Jülich, 2010. Erschienen unter: Schriften des Forschungszentrums Jülich - Reihe Energietechnik, Band/Volume 69.
 - [19] J. Latz. *Entschwefelung von Mitteldestillaten für die Anwendung in mobilen Brennstoffzellen-Systemen*. Forschungszentrum Jülich, 2008. Erschienen unter: Schriften des Forschungszentrums Jülich - Reihe Energietechnik, Band/Volume 14.
 - [20] J. Latz, R. Peters, J. Pasel, L. Datsevich, A. Jess. Hydrodesulfurization of jet fuel by pre-saturated one-liquid-flow technology for mobile fuel cell applications. *Chemical Engineering Science* **64**(2) , 288–293, January 2009.
 - [21] Y. Wang, J. Latz, R. Dahl, J. Pasel, R. Peters. Liquid phase desulfurization of jet fuel by a combined pervaporation and adsorption process. *Fuel Processing Technology* **90**, 458–464, 2009.
 - [22] O. Hein. *Umwandlung von leichtem Heizöl in ein homogenes Brenngas-Luftgemisch mittels kalter Flamme*. Dissertation, RWTH Aachen, 2003.
 - [23] R. S. Sheinson, F. W. Williams. Chemiluminescence Spectra from Cool and Blue Flames: Electronically Exited Formaldehyde. *Combustion and Flame* **21**, 221 – 230, 1973.
 - [24] A. Fish. Kalte Flammen von Kohlenwasserstoffen. *Angewandte Chemie* **80**(2) , 53–69, 1968.

-
- [25] J. v. Schloß. Forschung im Bereich Kalte Flammen. <http://www.owi-aachen.de/index.php?aktiv=4&ref=KF>, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [26] A. Naidja, C. R. Krishna, T. Butcher, D. Mahajan. Cool flame partial oxidation and its role in combustion and reforming of fuels for fuel cell systems. *Progress in Energy and Combustion Science* **29**(2) , 155–191, 2003.
- [27] C. Mengel, K. Lucka, H. Köhne. Auslegungskriterien für die Gemischbildung flüssiger Brennstoffe durch Kalte Flammen. In *4. Aachener Kolloquium - Heizwärme aus Ölverbrennung*. Shaker, 2003.
- [28] C. Mengel, K. Lucka, H. Köhne, O. Hein, A. Jess. Umwandlung von leichtem Heizöl in ein homogenes Brenngas-Luftgemisch mittels Kalter Flammen. *Erdöl Erdgas Kohle* **118**, 465–470, 2002.
- [29] S. Montel. *Brenngaserzeugung aus Dieseldieselkraftstoff für den Einsatz in Brennstoffzellenantrieben*. Forschungszentrum Jülich, 2003. Erschienen unter Berichte des Forschungszentrums Jülich, JUEL-4051.
- [30] S. Montel, P. Cremer, R. Menzer, C. Palm, R. Peters. *Dieselreformierung für Brennstoffzellenfahrzeuge, Zwischenbericht für den Zeitraum 1. Juli 1999 - 29. Februar 2000*. Forschungszentrum Jülich, 2000.
- [31] J. Pasel, J. Latz, Z. Porš, J. Meißner, R. C. Samsun, A. Tschauder, R. Peters. Autothermal Reforming of Jet A-1 and Diesel: General Aspects and Experimental Results. *Fuel Cell Seminar 2007, ECS Transactions* **12**(1) , 589–600, 2008.
- [32] J. Pasel, J. Meißner, Z. Porš, R. C. Samsun, A. Tschauder, R. Peters. Autothermal reforming of commercial Jet A-1 on a 5 kWe scale. *International Journal of Hydrogen Energy* **32**(18) , 4847–4858, December 2007.
- [33] J. Pasel, R. C. Samsun, D. Schmitt, R. Peters, D. Stolten. Test of a water-gas-shift reactor on a 3 kWe-scale – design points for high- and low-temperature shift reaction. *Journal of Power Sources* **152**, 189–195, December 2005.
- [34] J. Pasel, P. Cremer, B. Wegner, R. Peters, R. D. Stolten. Combination of autothermal reforming with water-gas-shift reaction – small-scale testing of different water-gas-shift catalysts. *Journal of Power Sources* **126**(1-2) , 112–118, February 2004.
- [35] J. Hagen. *Technische Katalyse - Eine Einführung*. Wiley-VCH, 1996.
- [36] J. A. Dumesic, G. W. Huber, M. Boudart. *Handbook of Heterogeneous Catalysis*. Wiley-VCH, 2008.
- [37] R. C. Samsun. *Kerosinreformierung für Luftfahrtanwendungen*. Forschungszentrum Jülich, 2008. Erschienen unter Schriften des Forschungszentrums Jülich - Reihe Energietechnik, Band/Volume 11.
- [38] Turbine Fuel, Aviation Kerosine Type, Jet A-1, NATO Code: F-35, Joint Service Designation: AVTUR, 2005.

- [39] DIN EN 590: Kraftstoffe für Kraftfahrzeuge - Dieselmotorkraftstoffe - Anforderungen und Prüfverfahren, 2004.
- [40] DIN EN 228: Unverbleite Ottokraftstoffe - Anforderungen und Prüfverfahren.
- [41] R. Peters, A. Tschauder, J. Pasel, D. Stolten. Autothermer Reformer, 2005. Patent: 10 2005 026 780.
- [42] P. Horstmann. *Reduzierung der Schadstoffemissionen bei der Verbrennung flüssiger Brennstoffe durch Abstimmung von Zerstäuberprinzip und Luftführung am Beispiel der Ultraschallzerstäubung sowie der Radialimpulsstabilisierung*. Dissertation, RWTH Aachen, 1999.
- [43] T. Richter. *Zerstäuben von Flüssigkeiten*. Expert-Verlag, 2004.
- [44] G. Wozniak. *Zerstäubungstechnik: Prinzipien, Verfahren, Geräte*. Springer, 2002.
- [45] Düsen-Schlick GmbH. Schlick Kreisl-Nebeldüsen Modellreihe 121-123, Technische Information 4/01. www.duesen-schlick.de.
- [46] M. Ciofalo, A. Caronia, M. Di Liberto, S. Puleo. The Nukiyama curve in water spray cooling: Its derivation from temperature-time histories and its dependence on the quantities that characterize drop impact. *International Journal of Heat and Mass Transfer* **50**, 4948–4966, 2007.
- [47] S. Nukiyama. The maximum and minimum values of the heat Q transmitted from metal to boiling water under atmospheric pressure. *International Journal of Heat and Mass Transfer* **9**(12), 1419–1433, December 1966.
- [48] J. R. Thome. *Engineering Databook III*. Wolverine Tube, 2004.
- [49] K. Stephan. Beitrag zur Thermodynamik des Wärmeübergangs beim Sieden. *Abhandlungen des Deutschen Kältetechnischen Vereins* **0018**, 1964.
- [50] VDI. *VDI-Wärmeatlas*. 2006.
- [51] D. Butterworth, G. F. Hewitt. *Two-phase flow and heat transfer*. 1977.
- [52] J. G. Collier, J.R. Thome. *Convective Boiling and Condensation*. Oxford University Press, 1996.
- [53] D. S. Christen. *Praxiswissen der chemischen Verfahrenstechnik: Handbuch für Chemiker und Verfahreningenieure*. Springer, 2010.
- [54] F. Puschmann. *Experimentelle Untersuchung der Spraykühlung zur Qualitätsverbesserung durch definierte Einstellung des Wärmeübergangs*. Dissertation, Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, 2003.
- [55] R. Jeschar, L. Maibücher. Experimentelle Untersuchung des Wärmeübergangs bei der Verdampfungskühlung im Sprühnebel, 2010. <http://www.ievb.tu-clausthal.de/>

- fileadmin/Downloads/Forschungsberichte/bericht-20_maibuecher.pdf, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [56] G. Bleiker. *Filmverdampfung von Einzeltropfen auf heißen Oberflächen*. Shaker Verlag, 2000.
- [57] G. Strotos, M. Gavaises, A. Theodorakakos, G. Bergeles. Numerical investigation on the evaporation of droplets depositing on heated surfaces at low Weber numbers. *International Journal of Heat and Mass Transfer* **51**(7-8) , 1516–1529, April 2008.
- [58] S. Nishio, Y.-C. Kim. Heat transfer of dilute spray impinging on hot surface (simple model focusing on rebound motion and sensible heat of droplets). *International Journal of Heat and Mass Transfer* **41**(24) , 4113–4119, October 1998.
- [59] J. D. Bernadin. Mapping of impact and heat transfer regimes of water drops impinging on a polished surface. *International Journal of Heat and Mass Transfer* **40**, pp 247–267, 1997.
- [60] R. P. Selvam, L. Lin, R. Ponnappan. Direct simulation of spray cooling: Effect of vapor bubble growth and liquid droplet impact on heat transfer. *International Journal of Heat and Mass Transfer* **49**(23-24) , 4265–4278, November 2006.
- [61] M. Visaria, I. Mudawar. Theoretical and experimental study of the effects of spray inclination on two-phase spray cooling and critical heat flux. *International Journal of Heat and Mass Transfer* **51**(9-10) , 2398–2410, May 2008.
- [62] W. Marquardt. *Modellbildung und Analyse verfahrenstechnischer Prozesse*. 2006.
- [63] J. H. Ferziger, M. Peric. *Numerische Strömungsmechanik*. Springer, 2008.
- [64] R. Ansorge, T. Sonar. *Mathematical Models for Fluid Dynamics, Modelling, Theory, Basic Numerical Facts*. Wiley-VCH, 2009.
- [65] Ansys Inc. *ANSYS FLUENT 12.0 Theory Guide*, 2009.
- [66] H. Herwig. *Strömungsmechanik - Eine Einführung in die Physik und die mathematische Modellierung von Strömungen*. Springer, 2004.
- [67] H. Schlichting, K. Gersten. *Grenzschichttheorie*. Springer, 2006.
- [68] C. L. Feffermann. Existence and Smoothness of the Navier-Stokes Equation. http://www.claymath.org/millennium/Navier-Stokes_Equations/navierstokes.pdf Aufgerufen am 18.10.2011.
- [69] C. A. Brebbia, A. J. Ferrante. *Computational methods for the solution of engineering problems, 3rd revised edition*. Pentech Press, 1986.
- [70] B. E. Schönung. *Numerische Strömungsmechanik, Inkompressible Strömungen mit komplexen Berandungen*. Springer, 1990.

- [71] C. A. J. Fletcher. *Computational Techniques for Fluid Dynamics, Volume 1, Fundamental and General Technique*. Springer, 1991.
- [72] Ansys Inc. *ANSYS FLUENT 12.0 User's Guide*, 2009.
- [73] U. Detert. JuRoPA - JuRoPA-JSC / HPC-FF An Overview, 2010. <http://www2.fz-juelich.de/jsc/files/docs/vortraege/supercomputer/SC-JUROPA-Introduction.pdf>, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [74] ANSYS. *Fluent User-Service*, 2011.
- [75] TU Braunschweig, Pfleiderer Institut für Strömungsmaschinen. *CFD in Strömungsmaschinen*, 2008. <http://www.pfi.tu-bs.de/pdf/Cfd.pdf>, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [76] H. Herwig. *Strömungsmechanik A-Z, Eine systematische Einordnung von Begriffen und Konzepten der Strömungsmechanik*. Vieweg, 2002.
- [77] A. R. Paschedag. *CFD in der Verfahrenstechnik: allgemeine Grundlagen und mehrphasige Anwendungen*. Wiley, 2004.
- [78] D. P. Schmidt, I. Nouar, P. K. Senecal, C. J. Rutland, J. K. Martin, R. D. Reitz, Jeffrey A. Hoffman. Pressure-Swirl Atomization in the Near Field. *SAE Paper* 01(1999-01-0496), 0496, 1999.
- [79] R. Peters, P. Cremer, J. Pasel, Z. Pors, D. Stolten. Mischkammer für einen Reformer sowie Verfahren zum Betreiben derselben, 2004.
- [80] Z. Porš, A. Tschauder, J. Pasel, R. Peters, D. Stolten. Mischkammer für einen Reformer sowie Strategie zum Betreiben derselben, 2004.
- [81] Z. Porš. Reformerdesigns basierend auf ATR-9, ATR Konzepte im Rahmen des Projektes ADELHEID, 2008. Interner Bericht, Forschungszentrum Jülich - IEK-3.
- [82] Z. Porš. Entwicklung der Mischkammer des Kerosinreformers ATR-10 für die Leistung von 50 kWel, 2006. Interner Bericht, Forschungszentrum Jülich - IEK-3.
- [83] J. Meißner. *Construction and design of a catalytic burner for a fuel cell system*. Diplomarbeit, FH Aachen, 2009.
- [84] F. Scharf. *Strömungsdynamische Simulation und Analyse integrierter Wasserverdampfer in Reaktionsapparaten*. Diplomarbeit, RWTH Aachen, 2008.
- [85] Düsen-Schlick GmbH. Schlick Kreisl-Nebeldüsen Modellreihe 100-200, Technische Information 4/01. www.duesen-schlick.de, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [86] Düsen-Schlick GmbH. Schlick Kreisl-Nebeldüsen Modellreihe 400-401, Technische Information 4/01. www.duesen-schlick.de, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [87] Lechler GmbH. Hohlkegeldüsen, Produktübersicht/Technische Daten. www.lechler.com, Aufgerufen am 18.10.2011.

-
- [88] BETE Deutschland GmbH. HA Hohlkegeldüse. www.bete-duesen.de, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [89] Lechler GmbH. Vollkegeldüsen, Produktübersicht/Technische Daten. www.lechler.com, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [90] Düsen-Schlick GmbH. Schlick Zweistoffdüsen Modellreihe 970, Technische Information 4/01. www.duesen-schlick.de, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [91] Lechler GmbH. Pneumatikdüsen, Produktübersicht/Technische Daten. www.lechler.com, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [92] E. O. Olson. Fuel Nozzles for Oil Burners. http://www.delavaninc.com/pdf/Fuel_Nozzles_for_Burners.PDF, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [93] S. G. Goebel, D. P. Miller, W. H. Pettit, M. D. Cartwright. Fast starting fuel processor for automotive fuel cell systems. *International Journal of Hydrogen Energy* **30**(9) , 953–962, August 2005.
- [94] X. Karatzas, M. Nilsson, J. Dawody, B. Lindström, L. J. Pettersson. Characterization and optimization of an autothermal diesel and jet fuel reformer for 5 kWe mobile fuel cell applications. *Chemical Engineering Journal* **156**(2) , 366–379, January 2010.
- [95] B. Lindström, J. A. J. Karlsson, P. Ekdunge, L. De Verdier, B. Häggendal, J. Dawody, M. Nilsson, L. J. Pettersson. Diesel fuel reformer for automotive fuel cell applications. *International Journal of Hydrogen Energy* **34**(8) , 3367–3381, May 2009.
- [96] P. Beckhaus, M. Dokupil, A. Heinzl, S. Souzani, C. Spitta. On-board fuel cell power supply for sailing yachts. *Journal of Power Sources* **145**(2) , 639–643, August 2005.
- [97] M. Steffen. Reformer for hydrogen production in residential fuel cell systems. http://www.zbt-duisburg.de/en/Technology/RD/Hydrogen_production/house_applications/, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [98] S. Yoon, J. Bae, S. Kim, Y.-S. Yoo. Self-sustained operation of a kWe-class kerosene-reforming processor for solid oxide fuel cells. *Journal of Power Sources* **192**(2) , 360–366, July 2009.
- [99] G. Barroso, A. Escher, K. Boulouchos. Jahresbericht 2004, Projekt: Erarbeitung von Grundlagen für innovative Brennverfahren und motorische Arbeitsprozesse, 2004.
- [100] C.P. Mao, J. Short, P. Buelow, M. Caples, R. Siders, D. Clausen. Innovative Injection and Mixing Systems for Diesel Fuel Reforming. In *SECA 6th Annual Workshop*, 2005.
- [101] S. D. Pack. An Innovative Injection and Mixing System for Diesel Fuel Reforming, 2007. http://www.netl.doe.gov/publications/proceedings/05/seca_workshop/pdf/day2_3/Goodrich-Mao%204-20.pdf, Aufgerufen am 18.10.2011.

- [102] T. Aicher, B. Lenz, F. Gschnell, U. Groos, F. Federici, L. Caprile, L. Parodi. Fuel processors for fuel cell APU applications. *Journal of Power Sources* **154**(2) , 503–508, March 2006.
- [103] A. Peterson, R. Tacina. Optimization of Swirler-Venturi Mixer Geometry for Fuel Reformer Applications. In *3rd International Energy Conversion Engineering Conference*, 2005.
- [104] Y. R. Hicks. Fuel Injector-Mixer Concepts Examined for Kerosene and Diesel Fuel Reformer Applications Using Laser-Based Techniques, 08 2010. <http://www.grc.nasa.gov/WWW/RT/2006/RT/RTB-hicks.html>, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [105] R. Tacina, Y. R. Hicks, R. Anderson. Experimental Performance of a Swirl-Venturi Fuel Mixer for a Fuel Cell Reformer. In *ASME Conference Proceedings Volume 1: Combustion and Fuels, Education / Combustion and Fuels*, 2006.
- [106] S. H. Park, S. H. Yoon, C. S. Lee. Effects of multiple-injection strategies on overall spray behavior, combustion, and emissions reduction characteristics of biodiesel fuel. *Applied Energy* **88**(1) , 88–98, January 2011.
- [107] Tecpro. Air Atomizing Spray Nozzles - Ultrasonic & Conventional. www.tecpro.com.au/air-atomising.htm, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [108] I. Kang, J. Bae, S. Yoon, Y. Yoo. Performance improvement of diesel autothermal reformer by applying ultrasonic injector for effective fuel delivery. *Journal of Power Sources* **172**, 845–852, 2007.
- [109] K. Reif. *Moderne Diesel-Einspritzsysteme*. Bosch Fachinformation Automobil, 2010.
- [110] C.-P. Mao, J. Short, P. Buelow. Innovative injection and Mixing Systems for Diesel Fuel Reforming, 2005. Goodrich.
- [111] CUTECH, ZBT, TU Clausthal, TU Braunschweig. Entwicklung eines neuartigen Konzepts propanbetriebener SOFC-Brennstoffzellen durch Reformierung mit partieller Anodenabgas-Rückführung (AAGR), 2010.
- [112] O. Tremmel. *Potentiale variabler Einspritzsysteme für die Diesel-Direkteinspritzung*. Dissertation, Uni Hannover, 2007.
- [113] G. Kolb, J. Schürer, D. Tiemann, M. Wichert, R. Zapf, V. Hessel, H. Löwe. Fuel processing in integrated micro-structured heat-exchanger reactors. *Journal of Power Sources* **171**(1) , 198–204, September 2007.
- [114] M. O'Connell, G. Kolb, K.-P. Schelhaas. An Investigation into the Transient Behavior of a Microreactor System for Reforming of Diesel Fuel in the kW Range. *Chemical Engineering Technology* **21**, 1790–1798, 2009.
- [115] M. O'Connell, G. Kolb, K.P. Schelhaas. Development and evaluation of a microreactor for reforming of diesel fuel in the kW range. *International Journal of Hydrogen Energy* **34**, 6290–6303, 2009.

- [116] G. Kolb, C. Hofmann, M. O'Connell, J. Schürer. Microstructured reactors for diesel steam reforming, water-gas shift and preferential oxidation in the kiloWatt power range. *Catalysis Today* **147S**, S176–S184, 2009.
- [117] S. Ahmed, R. Ahluwalia, S.H.D. Lee, S. Lottes. A gasoline fuel processor designed to study quick-start performance. *Journal of Power Sources* **154**, 214–222, 2006.
- [118] A. Qi, S. Wang, G. Fu, D. Wu. Integrated fuel processor built on autothermal reforming of gasoline: A proof-of-principle study. *Journal of Power Sources* **162**, 1254–1264, 2006.
- [119] G. Jackson, I. Young. Influence of System Architecture in Achieving Low Cost and Efficient PEM Fuel Cell Systems. In *Fuel Cell Seminar 2010*, 2010.
- [120] 2010. Patent WO 2010/080054 A1.
- [121] S. Roychoudhury, D. Walsh, D. Chu, E. Kallio. Performance of a Diesel, JP-8 Reformer, 2006. <http://dodreports.com/ada506980>, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [122] INC Precision Combustion. Company Capabilities. http://www.precision-combustion.com/PCI_Brochure_2_2011E.pdf, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [123] S. Yoon, J. Bae, S. Kim, Y.-S. Yoo. Self-sustained operation of a kWe-class kerosene-reforming processor for solid oxide fuel cells. *Journal of Power Sources* **192**, 360–366, 2009.
- [124] 2009. Patent EP 2070591 A2.
- [125] ANSYS FLUENT. Stoffdatenbank.
- [126] M. Rachner. Die Stoffeigenschaften von Jet A-1, 1998. Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt e.V.
- [127] P. Dagaut, M. Cathonnet. The ignition, oxidation, and combustion of kerosene: A review of experimental and kinetic modeling. *Progress in Energy and Combustion Science* **32**(1), 48 – 92, 2006.
- [128] J. Luche, M. Reuillon, J.-C. Boettner, M. Cathonnet. Reduction of Large Detailed Kinetic Mechanisms: Application to Kerosene/Air Combustion. *Combustion Science and Technology* **176**(11), 1935–1963, November 2004.
- [129] B. Franzelli, E. Riber, M. Sanjose, T. Poinot. A two-step chemical scheme for kerosene-air premixed flames. *Combustion and Flame* **157**(7), 1364 – 1373, 2010.
- [130] C. M. Gracia-Salcedo. Experimental Verification of the Thermodynamic Properties for a Jet-A Fuel, 1988. http://www.anl.gov/PCS/acsfuel/preprint%20archive/Files/33_4_LOS%20ANGELES_09-88_0875.pdf, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [131] M. Colket, T. Edwards, S. Williams, N. Cernansky, D. L. Miller, F. Egolfopoulos, P. Linstedt, R. Seshadri, F. L. Dryer, C. K. Law, D. G. Friend, D. Lenhart, H. Pitsch, A.

- Sarofim, M. Smooke, W. Tsang. Development of an Experimental Database and Kinetic Models for Surrogate Jet Fuels. In *45th AIAA Aerospace Sciences Meeting and Exhibit Proceedings*, 2007.
- [132] Düsen-Schlick GmbH. Beschreibung der Durchmessermomentenverteilung, Modell 121.
- [133] A. K. Jasuja. Atomization of Crude and Residual Fuel Oils. *Journal of Engineering for Power* **101**(2) , 250–258, 1979.
- [134] D. Hoffmann. Strömungscharakterisierung in den Kernkomponenten eines Brenngas-erzeugungssystems für Brennstoffzellen, 2011. Studienarbeit, Forschungszentrum Jülich - IEK-3, RWTH Aachen.
- [135] K.-L. Pan, P.-C. Chou, Y.-J. Tseng. Binary droplet collision at high Weber number. *Physical Review E* **80**, 036301–1 bis 036301–8, 2009.
- [136] J. Vondricka. Ventil RRV 242 und Elektronik. persönliche Mitteilung.
- [137] J. Pasel. Interner Bericht in Vorbereitung: Prototypentest ATR 9.1, 2011. Forschungszentrum Jülich - IEK-3.
- [138] J. Pasel, R. C. Samsun. Interner Bericht in Vorbereitung: Prototypentest ATR 9.2, 2011. Forschungszentrum Jülich - IEK-3.
- [139] J. Meißner. Interner Bericht in Vorbereitung: Prototypentest CAB 2.3, 2011. Forschungszentrum Jülich - IEK-3.
- [140] M. Hartmann. *Erzeugung von Wasserstoff mittels katalytischer Partialoxidation höherer Kohlenwasserstoffe an Rhodium*. Dissertation, Universität Karlsruhe, 2009.
- [141] M. Hartmann, S. Lichtenberg, N. Heben, D. Zhang, O. Deutschmann. Experimentelle Untersuchung der katalytischen Partialoxidation von Modellkraftstoffen unter definierten Randbedingungen. *Chemie* **84**. No. 7, 909 – 919, 2009.
- [142] B. T. Schädel. *Wasserdampfpreformierung von Erdgas mit Rhodiumkatalysatoren: Aktivität und Deaktivierung*. Dissertation, Universität Karlsruhe, 2008.
- [143] W. Kollenberg. *Technische Keramik, Grundlagen, Werkstoffe, Verfahrenstechnik*. 2004.
- [144] D. C. Grenoble, M. M. Estadt, D. F. Ollis. The chemistry and catalysis of the water gas shift reaction : 1. The kinetics over supported metal catalysts. *Journal of Catalysis* **67**(1) , 90–102, January 1981.
- [145] O. Deutschmann, I.D. Schmidt. Modeling the Partial Oxidation of Methane in a Short-Contact-Time Reactor. *AIChE Journal* Vol. **44**, No. 11, 2465–2477, 1998.
- [146] L. Shi, D. J. Bayless, M. E. Prudich. A model of steam reforming of iso-octane: The effect of thermal boundary conditions on hydrogen production and reactor temperature. *International Journal of Hydrogen Energy* **33**(17) , 4577–4585, September 2008.

-
- [147] L. Shi, D. J. Bayless, M. E. Prudich. A CFD model of autothermal reforming. *International Journal of Hydrogen Energy* **34**(18) , 7666–7675, September 2009.
- [148] J. Xuan, M. K. H. Leung, D. Y. C. Leung, M. Ni. Integrating chemical kinetics with CFD modeling for autothermal reforming of biogas. *International Journal of Hydrogen Energy* **34**(22) , 9076–9086, November 2009.
- [149] P. Canu, S. Vecchi. CFD Simulation of Reactive Flows: Catalytic Combustion in a Monolith. *AIChE Journal* **Vol. 48 No. 12**, 2921 – 2935, 2002.
- [150] M. Chen, J. Aleixo, S. Williams, T. Leprince, Y. Yong. CFD Modelling of 3-Way Catalytic Converters with Detailed Catalytic Surface Reaction Mechanism. *SAE Paper* (2004-01-0148) , 2004.
- [151] C. Wiethäge. *Mobile Brenngaserzeugungssysteme mit Mitteldestillaten für Hochtemperatur PEFC*. Dissertation, Forschungszentrum Jülich, RWTH Aachen, 2012. in Arbeit.
- [152] National Institute of Standards and Technology, 2011. <http://webbook.nist.gov>, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [153] C. Krupp. Verweilzeitanalyse und Modellierung des Strömungseinflusses auf das Reaktionsverhalten in chemischen Reaktoren, 2011. Studienarbeit, Forschungszentrum Jülich - IEK-3, RWTH Aachen.
- [154] B. F. Gray, C. H. Yang. On the Unification of the Thermal and Chain Theories of Explosion Limits. *Journal of Physical Chemistry* **6**, 2747–2750, 1965.
- [155] N. M. Wruck. *Transientes Sieden von Tropfen beim Wandaufprall*. Shaker Verlag, 1999.
- [156] F. Puschmann, E. Specht. Spraykühlung als alternatives Kühlverfahren für Metalle. *Chemie Ingenieur Technik* **75**, **No. 11**, 2003.
- [157] K. Wilkner. *Entwicklung und Durchführung eines Experiments zur Charakterisierung des Siedeverhaltens eines Wassertropfensprays*. Diplomarbeit, FH Aachen, 2010.
- [158] T. Heysel. *Experimentelle Untersuchung und Modellbildung zum Strömungs- und Siedeverhalten von Wassertropfen in den integrierten Wärmetauschern eines Brenngaserzeugungssystems*. Diplomarbeit, Fachhochschule Strahlsund, 2011.
- [159] S. Toda. A Study of Mist Cooling-Thermal Behaviours of Liquid Films Formed from Mist Drops on a Heated Surface at High Temperature and High Heat Fluxes. *Technology Reports, Tohoku Univ. Japan* **92**(92) , 299–350, 1971.
- [160] S. Toda. A Study of Mist Cooling-(2nd Report: Theory of Mist Cooling and its Fundamental Experiments). *Heat Transfer-Japanese Research* **3**, 1–44., 1974.
- [161] N. M. Wruck, U. Renz. *Transient Phenomena in Multiphase and Multicomponent Systems*, chapter Transient Phase-Change of Droplets Impacting on a Hot Wall, pages 210 – 225. Deutsche Forschungsgesellschaft.

- [162] S.-C. Yao, K. Y. Cai. The dynamics and leidenfrost temperature of drops impacting on a hot surface at small angles. *Experimental Thermal and Fluid Science* 1(4) , 363–371, October 1988.
- [163] I. Mudawar J. D. Bernadin. A Leidenfrost Model for Impinging Droplets and Sprays. *Journal of Heat Transfer* 126, 272 – 278, 2004.
- [164] M. Muster, L. Maibücher, R. Weber, R. Jeschar. Einfluss einer Zweiphasenströmung auf die Kühlwirkung beim Abschrecken heißer Metalloberflächen in Tauchbädern. *Gaswärme International* 5, 2005.
- [165] R.-H. Chen, S.-L. Chiu, T.-H. Lin. On the collision behaviors of a diesel drop impinging on a hot surface. *Experimental Thermal and Fluid Science* 32(2) , 587–595, November 2007.
- [166] Hertsch und Cie AG. Glüh und Anlassfarben. http://www.hertsch.ch/1205_tabellen.html, Aufgerufen am 18.10.2011.
- [167] Airbus. *Getting to grips with aircraft performance. Flight Operations Support & Line Assistance*. 2002.
- [168] J. Pasel, R. C. Samsun, F. Scharf, C. Döll, R. Peters, D. Stolten. Development of Fuel Cell Systems for Aircraft Applications Based on Synthetic Fuels. In D. Stolten, T. Grube, Herausgeber, *18th World Hydrogen Energy Conference 2010 - WHEC 2010, Parallel Sessions Book 3: Hydrogen Production Technologies - Part 2*, 2010. Erschienen unter Schriften des Forschungszentrums Jülich - Reihe Energy & Environment, Band/Volume 78-3.

Danksagung

Die vorliegende Dissertation ist während meiner Tätigkeit am Institut für Energie- und Klimaforschung – Brennstoffzellen (IEK-3) des Forschungszentrums Jülich entstanden, dem ich für die finanzielle Unterstützung sowie hervorragende Arbeitsbedingungen dankbar bin.

Ich danke meinem Doktorvater und Direktor des IEK-3, Herrn Prof. Dr.-Ing. Detlef Stolten für die Ermöglichung und die Förderung meiner Arbeit. Herrn Prof. Dr.-Ing. Matthias Wessling und Herrn Prof. Dr.-Ing. Jörg Feldhusen von der RWTH Aachen danke ich für die Übernahme des Korreferats beziehungsweise des Prüfungsvorsitzes.

Großer Dank gebührt meinem Abteilungsleiter Prof. Dr.-Ing. Ralf Peters und meinem Gruppenleiter Dr. Remzi Can Samsun und Dr. Joachim Pasel. Sie waren in Fragen fachlicher, methodischer und administrativer Art immer ansprechbar und standen mir mit konstruktiven Lösungsvorschlägen zur Seite. Ihre Erfahrung und stete Unterstützung haben wesentlich zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen.

Die freundliche und hilfsbereite Arbeitsatmosphäre am IEK-3 im Allgemeinen sowie der Abteilung BGS im Besonderen hat mich immer wieder neu inspiriert und motiviert. Ich danke allen, die dazu beigetragen und mich unterstützt haben.

Mein Dank gebührt insbesondere Herrn Andreas Tschauder, Herrn Jan Meißner und Herrn Thomas Benke für die hervorragende Zusammenarbeit bei der Konstruktion und der Auslegung der jeweiligen Reaktoren sowie Uwe Klüttgen, Dirk Schmidt, Rudolf Dahl, Bert Sobotta, Lydia Schlenkermann und Kevin Caspers für die Unterstützung bei der technischen Ausführung der durchgeführten Experimente.

Weiterhin danke ich allen beteiligten Studien- und Diplomarbeitern für ihre Beiträge zu dieser Arbeit. Ebenso den Mitarbeitern unserer Kooperationspartner, die wichtige Aspekte zur praktischen Umsetzung dieser Arbeit beigetragen haben.

Von meiner Familie und Freunden habe ich stets große Unterstützung erhalten, wofür ich sehr dankbar bin.

Teile der vorliegenden Dissertation wurden im Projekt ADELHEID durch das Ministerium für Klimaschutz, Umwelt, Landwirtschaft, Natur- und Verbraucherschutz des Landes NRW im Rahmen des Programms „Rationelle Energieverwendung, regenerative Energien und Energiesparen - progres.NRW“ und durch Mittel des EFRE-Strukturfonds der Europäischen Kommission gefördert. Die Rechenzeit auf dem Supercomputer JuRoPA wurde durch das Jülich Supercomputing Centre (JSC) im Rahmen des VSR-Projekts JIEF32 zur Verfügung gestellt.

1. **Einsatz von multispektralen Satellitenbilddaten in der Wasserhaushalts- und Stoffstrommodellierung – dargestellt am Beispiel des Rureinzugsgebietes**
von C. Montzka (2008), XX, 238 Seiten
ISBN: 978-3-89336-508-1
2. **Ozone Production in the Atmosphere Simulation Chamber SAPHIR**
by C. A. Richter (2008), XIV, 147 pages
ISBN: 978-3-89336-513-5
3. **Entwicklung neuer Schutz- und Kontaktierungsschichten für Hochtemperatur-Brennstoffzellen**
von T. Kiefer (2008), 138 Seiten
ISBN: 978-3-89336-514-2
4. **Optimierung der Reflektivität keramischer Wärmedämmschichten aus Yttrium-teilstabilisiertem Zirkoniumdioxid für den Einsatz auf metallischen Komponenten in Gasturbinen**
von A. Stuke (2008), X, 201 Seiten
ISBN: 978-3-89336-515-9
5. **Lichtstreuende Oberflächen, Schichten und Schichtsysteme zur Verbesserung der Lichteinkopplung in Silizium-Dünnschichtsolarzellen**
von M. Berginski (2008), XV, 171 Seiten
ISBN: 978-3-89336-516-6
6. **Politiksznarien für den Klimaschutz IV – Szenarien bis 2030**
hrsg.von P. Markewitz, F. Chr. Matthes (2008), 376 Seiten
ISBN 978-3-89336-518-0
7. **Untersuchungen zum Verschmutzungsverhalten rheinischer Braunkohlen in Kohledampferzeugern**
von A. Schlüter (2008), 164 Seiten
ISBN 978-3-89336-524-1
8. **Inorganic Microporous Membranes for Gas Separation in Fossil Fuel Power Plants**
by G. van der Donk (2008), VI, 120 pages
ISBN: 978-3-89336-525-8
9. **Sinterung von Zirkoniumdioxid-Elektrolyten im Mehrlagenverbund der oxidkeramischen Brennstoffzelle (SOFC)**
von R. Mücke (2008), VI, 165 Seiten
ISBN: 978-3-89336-529-6
10. **Safety Considerations on Liquid Hydrogen**
by K. Verfondern (2008), VIII, 167 pages
ISBN: 978-3-89336-530-2

11. **Kerosinreformierung für Luftfahrtanwendungen**
von R. C. Samsun (2008), VII, 218 Seiten
ISBN: 978-3-89336-531-9
12. **Der 4. Deutsche Wasserstoff Congress 2008 – Tagungsband**
hrsg. von D. Stolten, B. Emonts, Th. Grube (2008), 269 Seiten
ISBN: 978-3-89336-533-3
13. **Organic matter in Late Devonian sediments as an indicator for environmental changes**
by M. Klopisch (2008), XII, 188 pages
ISBN: 978-3-89336-534-0
14. **Entschwefelung von Mitteldestillaten für die Anwendung in mobilen Brennstoffzellen-Systemen**
von J. Latz (2008), XII, 215 Seiten
ISBN: 978-3-89336-535-7
15. **RED-IMPACT**
Impact of Partitioning, Transmutation and Waste Reduction Technologies on the Final Nuclear Waste Disposal
SYNTHESIS REPORT
ed. by W. von Lensa, R. Nabbi, M. Rossbach (2008), 178 pages
ISBN 978-3-89336-538-8
16. **Ferritic Steel Interconnectors and their Interactions with Ni Base Anodes in Solid Oxide Fuel Cells (SOFC)**
by J. H. Froitzheim (2008), 169 pages
ISBN: 978-3-89336-540-1
17. **Integrated Modelling of Nutrients in Selected River Basins of Turkey**
Results of a bilateral German-Turkish Research Project
project coord. M. Karpuzcu, F. Wendland (2008), XVI, 183 pages
ISBN: 978-3-89336-541-8
18. **Isotopengeochemische Studien zur klimatischen Ausprägung der Jünger Dryas in terrestrischen Archiven Eurasiens**
von J. Parplies (2008), XI, 155 Seiten, Anh.
ISBN: 978-3-89336-542-5
19. **Untersuchungen zur Klimavariabilität auf dem Tibetischen Plateau - Ein Beitrag auf der Basis stabiler Kohlenstoff- und Sauerstoffisotope in Jahrringen von Bäumen waldgrenznaher Standorte**
von J. Griessinger (2008), XIII, 172 Seiten
ISBN: 978-3-89336-544-9

20. **Neutron-Irradiation + Helium Hardening & Embrittlement Modeling of 9%Cr-Steels in an Engineering Perspective (HELENA)**
by R. Chaouadi (2008), VIII, 139 pages
ISBN: 978-3-89336-545-6
21. **in Bearbeitung**
22. **Verbundvorhaben APAWAGS (AOEV und Wassergenerierung) – Teilprojekt: Brennstoffreformierung – Schlussbericht**
von R. Peters, R. C. Samsun, J. Pasel, Z. Porš, D. Stolten (2008), VI, 106 Seiten
ISBN: 978-3-89336-547-0
23. **FREEVAL**
Evaluation of a Fire Radiative Power Product derived from Meteosat 8/9 and Identification of Operational User Needs
Final Report
project coord. M. Schultz, M. Wooster (2008), 139 pages
ISBN: 978-3-89336-549-4
24. **Untersuchungen zum Alkaliverhalten unter Oxycoal-Bedingungen**
von C. Weber (2008), VII, 143, XII Seiten
ISBN: 978-3-89336-551-7
25. **Grundlegende Untersuchungen zur Freisetzung von Spurstoffen, Heißgaschemie, Korrosionsbeständigkeit keramischer Werkstoffe und Alkalirückhaltung in der Druckkohlenstaubfeuerung**
von M. Müller (2008), 207 Seiten
ISBN: 978-3-89336-552-4
26. **Analytik von ozoninduzierten phenolischen Sekundärmetaboliten in *Nicotiana tabacum* L. cv Bel W3 mittels LC-MS**
von I. Koch (2008), III, V, 153 Seiten
ISBN 978-3-89336-553-1
27. **IEF-3 Report 2009. Grundlagenforschung für die Anwendung**
(2009), ca. 230 Seiten
ISBN: 978-3-89336-554-8
28. **Influence of Composition and Processing in the Oxidation Behavior of MCrAlY-Coatings for TBC Applications**
by J. Toscano (2009), 168 pages
ISBN: 978-3-89336-556-2
29. **Modellgestützte Analyse signifikanter Phosphorbelastungen in hessischen Oberflächengewässern aus diffusen und punktuellen Quellen**
von B. Tetzlaff (2009), 149 Seiten
ISBN: 978-3-89336-557-9

30. **Nickelreaktivlot / Oxidkeramik – Fügungen als elektrisch isolierende Dichtungskonzepte für Hochtemperatur-Brennstoffzellen-Stacks**
von S. Zügner (2009), 136 Seiten
ISBN: 978-3-89336-558-6
31. **Langzeitbeobachtung der Dosisbelastung der Bevölkerung in radioaktiv kontaminierten Gebieten Weißrusslands – Korma-Studie**
von H. Dederichs, J. Pillath, B. Heuel-Fabianek, P. Hill, R. Lennartz (2009),
Getr. Pag.
ISBN: 978-3-89336-532-3
32. **Herstellung von Hochtemperatur-Brennstoffzellen über physikalische Gasphasenabscheidung**
von N. Jordán Escalona (2009), 148 Seiten
ISBN: 978-3-89336-532-3
33. **Real-time Digital Control of Plasma Position and Shape on the TEXTOR Tokamak**
by M. Mitri (2009), IV, 128 pages
ISBN: 978-3-89336-567-8
34. **Freisetzung und Einbindung von Alkalimetallverbindungen in kohlebefeuchten Kombikraftwerken**
von M. Müller (2009), 155 Seiten
ISBN: 978-3-89336-568-5
35. **Kosten von Brennstoffzellensystemen auf Massenbasis in Abhängigkeit von der Absatzmenge**
von J. Werhahn (2009), 242 Seiten
ISBN: 978-3-89336-569-2
36. **Einfluss von Reoxidationszyklen auf die Betriebsfestigkeit von anodengestützten Festoxid-Brennstoffzellen**
von M. Ettler (2009), 138 Seiten
ISBN: 978-3-89336-570-8
37. **Großflächige Plasmaabscheidung von mikrokristallinem Silizium für mikromorphe Dünnschichtsolarmodule**
von T. Kilper (2009), XVII, 154 Seiten
ISBN: 978-3-89336-572-2
38. **Generalized detailed balance theory of solar cells**
by T. Kirchartz (2009), IV, 198 pages
ISBN: 978-3-89336-573-9
39. **The Influence of the Dynamic Ergodic Divertor on the Radial Electric Field at the Tokamak TEXTOR**
von J. W. Coenen (2009), xii, 122, XXVI pages
ISBN: 978-3-89336-574-6

40. **Sicherheitstechnik im Wandel Nuklearer Systeme**
von K. Nünighoff (2009), viii, 215 Seiten
ISBN: 978-3-89336-578-4
41. **Pulvermetallurgie hochporöser NiTi-Legierungen für Implantat- und Dämpfungsanwendungen**
von M. Köhl (2009), XVII, 199 Seiten
ISBN: 978-3-89336-580-7
42. **Einfluss der Bondcoatzusammensetzung und Herstellungsparameter auf die Lebensdauer von Wärmedämmschichten bei zyklischer Temperaturbelastung**
von M. Subanovic (2009), 188, VI Seiten
ISBN: 978-3-89336-582-1
43. **Oxygen Permeation and Thermo-Chemical Stability of Oxygen Permeation Membrane Materials for the Oxyfuel Process**
by A. J. Ellett (2009), 176 pages
ISBN: 978-3-89336-581-4
44. **Korrosion von polykristallinem Aluminiumoxid (PCA) durch Metalljodidschmelzen sowie deren Benetzungseigenschaften**
von S. C. Fischer (2009), 148 Seiten
ISBN: 978-3-89336-584-5
45. **IEF-3 Report 2009. Basic Research for Applications**
(2009), 217 Seiten
ISBN: 978-3-89336-585-2
46. **Verbundvorhaben ELBASYS (Elektrische Basissysteme in einem CFK-Rumpf) - Teilprojekt: Brennstoffzellenabgase zur Tankinertisierung - Schlussbericht**
von R. Peters, J. Latz, J. Pasel, R. C. Samsun, D. Stolten
(2009), xi, 202 Seiten
ISBN: 978-3-89336-587-6
47. **Aging of ¹⁴C-labeled Atrazine Residues in Soil: Location, Characterization and Biological Accessibility**
by N. D. Jablonowski (2009), IX, 104 pages
ISBN: 978-3-89336-588-3
48. **Entwicklung eines energetischen Sanierungsmodells für den europäischen Wohngebäudesektor unter dem Aspekt der Erstellung von Szenarien für Energie- und CO₂ - Einsparpotenziale bis 2030**
von P. Hansen (2009), XXII, 281 Seiten
ISBN: 978-3-89336-590-6

49. **Reduktion der Chromfreisetzung aus metallischen Interkonnektoren für Hochtemperaturbrennstoffzellen durch Schutzschichtsysteme**
von R. Trebbels (2009), iii, 135 Seiten
ISBN: 978-3-89336-591-3
50. **Bruchmechanische Untersuchung von Metall / Keramik-Verbundsystemen für die Anwendung in der Hochtemperaturbrennstoffzelle**
von B. Kuhn (2009), 118 Seiten
ISBN: 978-3-89336-592-0
51. **Wasserstoff-Emissionen und ihre Auswirkungen auf den arktischen Ozonverlust**
Risikoanalyse einer globalen Wasserstoffwirtschaft
von T. Feck (2009), 180 Seiten
ISBN: 978-3-89336-593-7
52. **Development of a new Online Method for Compound Specific Measurements of Organic Aerosols**
by T. Hohaus (2009), 156 pages
ISBN: 978-3-89336-596-8
53. **Entwicklung einer FPGA basierten Ansteuerungselektronik für Justageeinheiten im Michelson Interferometer**
von H. Nöldgen (2009), 121 Seiten
ISBN: 978-3-89336-599-9
54. **Observation – and model – based study of the extratropical UT/LS**
by A. Kunz (2010), xii, 120, xii pages
ISBN: 978-3-89336-603-3
55. **Herstellung polykristalliner Szintillatoren für die Positronen-Emissions-Tomographie (PET)**
von S. K. Karim (2010), VIII, 154 Seiten
ISBN: 978-3-89336-610-1
56. **Kombination eines Gebäudekondensators mit H₂-Rekombinatorelementen in Leichtwasserreaktoren**
von S. Kelm (2010), vii, 119 Seiten
ISBN: 978-3-89336-611-8
57. **Plant Leaf Motion Estimation Using A 5D Affine Optical Flow Model**
by T. Schuchert (2010), X, 143 pages
ISBN: 978-3-89336-613-2
58. **Tracer-tracer relations as a tool for research on polar ozone loss**
by R. Müller (2010), 116 pages
ISBN: 978-3-89336-614-9

59. **Sorption of polycyclic aromatic hydrocarbon (PAH) to Yangtze River sediments and their components**
by J. Zhang (2010), X, 109 pages
ISBN: 978-3-89336-616-3
60. **Weltweite Innovationen bei der Entwicklung von CCS-Technologien und Möglichkeiten der Nutzung und des Recyclings von CO₂**
Studie im Auftrag des BMWi
von W. Kuckshinrichs et al. (2010), X, 139 Seiten
ISBN: 978-3-89336-617-0
61. **Herstellung und Charakterisierung von sauerstoffionenleitenden Dünnschichtmembranstrukturen**
von M. Betz (2010), XII, 112 Seiten
ISBN: 978-3-89336-618-7
62. **Politiksznarien für den Klimaschutz V – auf dem Weg zum Strukturwandel, Treibhausgas-Emissionsszenarien bis zum Jahr 2030**
hrsg. von P. Hansen, F. Chr. Matthes (2010), 276 Seiten
ISBN: 978-3-89336-619-4
63. **Charakterisierung Biogener Sekundärer Organischer Aerosole mit Statistischen Methoden**
von C. Spindler (2010), iv, 163 Seiten
ISBN: 978-3-89336-622-4
64. **Stabile Algorithmen für die Magnetotomographie an Brennstoffzellen**
von M. Wannert (2010), ix, 119 Seiten
ISBN: 978-3-89336-623-1
65. **Sauerstofftransport und Degradationsverhalten von Hochtemperaturmembranen für CO₂-freie Kraftwerke**
von D. Schlehüser (2010), VII, 139 Seiten
ISBN: 978-3-89336-630-9
66. **Entwicklung und Herstellung von foliengegossenen, anodengestützten Festoxidbrennstoffzellen**
von W. Schafbauer (2010), VI, 164 Seiten
ISBN: 978-3-89336-631-6
67. **Disposal strategy of proton irradiated mercury from high power spallation sources**
by S. Chiriki (2010), xiv, 124 pages
ISBN: 978-3-89336-632-3
68. **Oxides with polyatomic anions considered as new electrolyte materials for solid oxide fuel cells (SOFCs)**
by O. H. Bin Hassan (2010), vii, 121 pages
ISBN: 978-3-89336-633-0

69. **Von der Komponente zum Stack: Entwicklung und Auslegung von HT-PEFC-Stacks der 5 kW-Klasse**
von A. Bendzulla (2010), IX, 203 Seiten
ISBN: 978-3-89336-634-7
70. **Satellitengestützte Schwerewellenmessungen in der Atmosphäre und Perspektiven einer zukünftigen ESA Mission (PREMIER)**
von S. Höfer (2010), 81 Seiten
ISBN: 978-3-89336-637-8
71. **Untersuchungen der Verhältnisse stabiler Kohlenstoffisotope in atmosphärisch relevanten VOC in Simulations- und Feldexperimenten**
von H. Spahn (2010), IV, 210 Seiten
ISBN: 978-3-89336-638-5
72. **Entwicklung und Charakterisierung eines metallischen Substrats für nanostrukturierte keramische Gastrennmembranen**
von K. Brands (2010), vii, 137 Seiten
ISBN: 978-3-89336-640-8
73. **Hybridisierung und Regelung eines mobilen Direktmethanol-Brennstoffzellen-Systems**
von J. Chr. Wilhelm (2010), 220 Seiten
ISBN: 978-3-89336-642-2
74. **Charakterisierung perowskitischer Hochtemperaturmembranen zur Sauerstoffbereitstellung für fossil gefeuerte Kraftwerksprozesse**
von S.A. Möbius (2010) III, 208 Seiten
ISBN: 978-3-89336-643-9
75. **Characterization of natural porous media by NMR and MRI techniques: High and low magnetic field studies for estimation of hydraulic properties**
by L.-R. Stingaciu (2010), 96 pages
ISBN: 978-3-89336-645-3
76. **Hydrological Characterization of a Forest Soil Using Electrical Resistivity Tomography**
by Chr. Oberdörster (2010), XXI, 151 pages
ISBN: 978-3-89336-647-7
77. **Ableitung von atomarem Sauerstoff und Wasserstoff aus Satellitendaten und deren Abhängigkeit vom solaren Zyklus**
von C. Lehmann (2010), 127 Seiten
ISBN: 978-3-89336-649-1

78. **18th World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC2010**
Proceedings
Speeches and Plenary Talks
ed. by D. Stolten, B. Emonts (2012)
ISBN: 978-3-89336-658-3
- 78-1. **18th World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC2010**
Proceedings
Parallel Sessions Book 1:
Fuel Cell Basics / Fuel Infrastructures
ed. by D. Stolten, T. Grube (2010), ca. 460 pages
ISBN: 978-3-89336-651-4
- 78-2. **18th World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC2010**
Proceedings
Parallel Sessions Book 2:
Hydrogen Production Technologies – Part 1
ed. by D. Stolten, T. Grube (2010), ca. 400 pages
ISBN: 978-3-89336-652-1
- 78-3. **18th World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC2010**
Proceedings
Parallel Sessions Book 3:
Hydrogen Production Technologies – Part 2
ed. by D. Stolten, T. Grube (2010), ca. 640 pages
ISBN: 978-3-89336-653-8
- 78-4. **18th World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC2010**
Proceedings
Parallel Sessions Book 4:
Storage Systems / Policy Perspectives, Initiatives and Cooperations
ed. by D. Stolten, T. Grube (2010), ca. 500 pages
ISBN: 978-3-89336-654-5
- 78-5. **18th World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC2010**
Proceedings
Parallel Sessions Book 5:
Strategic Analysis / Safety Issues / Existing and Emerging Markets
ed. by D. Stolten, T. Grube (2010), ca. 530 pages
ISBN: 978-3-89336-655-2
- 78-6. **18th World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC2010**
Proceedings
Parallel Sessions Book 6:
Stationary Applications / Transportation Applications
ed. by D. Stolten, T. Grube (2010), ca. 330 pages
ISBN: 978-3-89336-656-9

78 Set (complete book series)

**18th World Hydrogen Energy Conference 2010 – WHEC2010
Proceedings**

ed. by D. Stolten, T. Grube, B. Emonts (2010)

ISBN: 978-3-89336-657-6

79. Ultrafast voltex core dynamics investigated by finite-element micromagnetic simulations

by S. Gliga (2010), vi, 144 pages

ISBN: 978-3-89336-660-6

80. Herstellung und Charakterisierung von keramik- und metallgestützten Membranschichten für die CO₂-Abtrennung in fossilen Kraftwerken

von F. Hauler (2010), XVIII, 178 Seiten

ISBN: 978-3-89336-662-0

81. Experiments and numerical studies on transport of sulfadiazine in soil columns

by M. Unold (2010), xvi, 115 pages

ISBN: 978-3-89336-663-7

82. Prompt-Gamma-Neutronen-Aktivierungs-Analyse zur zerstörungsfreien Charakterisierung radioaktiver Abfälle

von J.P.H. Kettler (2010), iv, 205 Seiten

ISBN: 978-3-89336-665-1

83. Transportparameter dünner geträgerter Kathodenschichten der oxidkeramischen Brennstoffzelle

von C. Wedershoven (2010), vi, 137 Seiten

ISBN: 978-3-89336-666-8

84. Charakterisierung der Quellverteilung von Feinstaub und Stickoxiden in ländlichem und städtischem Gebiet

von S. Urban (2010), vi, 211 Seiten

ISBN: 978-3-89336-669-9

85. Optics of Nanostructured Thin-Film Silicon Solar Cells

by C. Haase (2010), 150 pages

ISBN: 978-3-89336-671-2

86. Entwicklung einer Isolationsschicht für einen Leichtbau-SOFC-Stack

von R. Berhane (2010), X, 162 Seiten

ISBN: 978-3-89336-672-9

87. Hydrogen recycling and transport in the helical divertor of TEXTOR

by M. Clever (2010), x, 172 pages

ISBN: 978-3-89336-673-6

88. **Räumlich differenzierte Quantifizierung der N- und P-Einträge in Grundwasser und Oberflächengewässer in Nordrhein-Westfalen unter besonderer Berücksichtigung diffuser landwirtschaftlicher Quellen**
von F. Wendland et. al. (2010), xii, 216 Seiten
ISBN: 978-3-89336-674-3
89. **Oxidationskinetik innovativer Kohlenstoffmaterialien hinsichtlich schwerer Luftfeinbruchstörfälle in HTR's und Graphitentsorgung oder Aufarbeitung**
von B. Schlögl (2010), ix, 117 Seiten
ISBN: 978-3-89336-676-7
90. **Chemische Heißgasreinigung bei Biomassenvergasungsprozessen**
von M. Stemmler (2010), xv, 196 Seiten
ISBN: 978-3-89336-678-1
91. **Untersuchung und Optimierung der Serienverschaltung von Silizium-Dünnschicht-Solarmodulen**
von S. Haas (2010), ii, 202 Seiten
ISBN: 978-3-89336-680-4
92. **Non-invasive monitoring of water and solute fluxes in a cropped soil**
by S. Garré (2010), xxiv, 133 pages
ISBN: 978-3-89336-681-1
93. **Improved hydrogen sorption kinetics in wet ball milled Mg hydrides**
by L. Meng (2011), II, 119 pages
ISBN: 978-3-89336-687-3
94. **Materials for Advanced Power Engineering 2010**
ed. by J. Lecomte-Beckers, Q. Contrepolis, T. Beck and B. Kuhn
(2010), 1327 pages
ISBN: 978-3-89336-685-9
95. **2D cross-hole MMR – Survey design and sensitivity analysis for cross-hole applications of the magnetometric resistivity**
by D. Fielitz (2011), xvi, 123 pages
ISBN: 978-3-89336-689-7
96. **Untersuchungen zur Oberflächenspannung von Kohleschlacken unter Vergasungsbedingungen**
von T. Melchior (2011), xvii, 270 Seiten
ISBN: 978-3-89336-690-3
97. **Secondary Organic Aerosols: Chemical Aging, Hygroscopicity, and Cloud Droplet Activation**
by A. Buchholz (2011), xiv, 134 pages
ISBN: 978-3-89336-691-0

98. **Chrom-bezogene Degradation von Festoxid-Brennstoffzellen**
von A. Neumann (2011), xvi, 218 Seiten
ISBN: 978-3-89336-692-7
99. **Amorphous and microcrystalline silicon applied in very thin tandem solar cells**
by S. Schicho (2011), XII, 190 pages
ISBN: 978-3-89336-693-4
100. **Sol-gel and nano-suspension electrolyte layers for high performance solid oxide fuel cells**
by F. Han (2011), iv, 131 pages
ISBN: 978-3-89336-694-1
101. **Impact of different vertical transport representations on simulating processes in the tropical tropopause layer (TTL)**
by F. Plöger (2011), vi, 104 pages
ISBN: 978-3-89336-695-8
102. **Untersuchung optischer Nanostrukturen für die Photovoltaik mit Nahfeldmikroskopie**
von T. Beckers (2011), xiii, 128 Seiten
ISBN: 978-3-89336-696-5
103. **Impact of contamination on hydrogenated amorphous silicon thin films & solar cells**
by J. Wördenweber (2011), XIV, 138 pages
ISBN: 978-3-89336-697-2
104. **Water and Organic Nitrate Detection in an AMS: Laboratory Characterization and Application to Ambient Measurements**
by A. Mensah (2011), XI, 111 pages
ISBN: 978-3-89336-698-9
105. **Entwicklung eines neuen Konzepts zur Steuerung der thermischen Ausdehnung von glaskeramischen Verbundwerkstoffen mit angepasster Fließfähigkeit am Beispiel der Hochtemperatur-Brennstoffzelle**
von E. Wanko (2011), xi, 134 Seiten
ISBN: 978-3-89336-705-4
106. **Tomographic reconstruction of atmospheric volumes from infrared limb-imager measurements**
by J. Ungermann (2011), xiv, 153 pages
ISBN: 978-3-89336-708-5
107. **Synthese und Identifizierung von substituierten Mg-Al-Cl Doppelhydroxidverbindungen mit Schwerpunkt IR-Spektroskopie**
von B. Hansen (2011), XII, 121 Seiten
ISBN: 978-3-89336-709-2

108. **Analysis of spatial soil moisture dynamics using wireless sensor networks**
by U. Rosenbaum (2011), xxii, 120 pages
ISBN: 978-3-89336-710-8
109. **Optimierung von APS-ZrO₂-Wärmedämmschichten durch Variation der Kriechfestigkeit und der Grenzflächenrauigkeit**
von M. E. Schweda (2011), 168 Seiten
ISBN: 978-3-89336-711-5
110. **Sorption of a branched nonylphenol isomer and perfluorooctanoic acid on geosorbents and carbon nanotubes**
by C. Li (2011), X, 102 pages
ISBN: 978-3-89336-716-0
111. **Electron Transport in the Plasma Edge with Rotating Resonant Magnetic Perturbations at the TEXTOR Tokamak**
by H. Stoschus (2011), iv, 113 pages
ISBN: 978-3-89336-718-4
112. **Diffusion and Flow Investigations in Natural Porous Media by Nuclear Magnetic Resonance**
by N. Spindler (2011), viii, 144 pages
ISBN: 978-3-89336-719-1
113. **Entwicklung und Erprobung des Hygrometer for Atmospheric Investigations**
von T. Klostermann (2011), IV, 118 Seiten
ISBN: 978-3-89336-723-8
114. **Application of functional gene arrays for monitoring influences of plant/seasons on bacterial functions and community structures in constructed wetlands (Bitterfeld, Germany)**
by J. Ning (2011), xiv, 157 pages
ISBN: 978-3-89336-724-5
115. **Wasseraustrag aus den Kathodenkanälen von Direkt-Methanol-Brennstoffzellen**
von A. Schröder (2011), VII, 228 Seiten
ISBN: 978-3-89336-727-6
116. **CITYZEN Climate Impact Studies**
ed. by M. Schultz (2011), 45 pages
ISBN: 978-3-89336-729-0
117. **Software Tools zum interoperablen Austausch und zur Visualisierung von Geodatenätzen über das Internet**
von M. Schultz, M. Decker, S. Lührs (2011), iv, 156 Seiten
ISBN: 978-3-89336-730-6

118. **Optimierung eines Leichtbaudesigns für ein SOFC-Brennstoffzellenstack**
von T. Nguyen-Xuan (2011), III, 154 Seiten
ISBN: 978-3-89336-732-0
119. **Institute of Energy and Climate Research IEK-6:
Nuclear Waste Management & Reactor Safety Report 2009/2010
Material Science for Nuclear Waste Management**
ed. by M. Klinkenberg, S. Neumeier, D. Bosbach (2011), 242 pages
ISBN: 978-3-89336-735-1
120. **Fate of the Antibiotic Sulfadiazine in Yangtze River Sediments: Transformation, Sorption and Transport**
by N. Meng (2011), XII, 111 pages
ISBN: 978-3-89336-736-8
121. **Thermodynamische Eigenschaften gasförmiger und kondensierter Verbindungen für Hochtemperaturanwendungen**
von T. Markus (2011), II, 131 Seiten
ISBN: 978-3-89336-728-3
122. **Ein neues LIF-Instrument für flugzeug- und bodengebundene Messungen von OH- und HO₂-Radikalen in der Troposphäre**
von S. Broch (2011), IV, 160 Seiten
ISBN: 978-3-89336-742-9
123. **Processes in the Yangtze River System - Experiences and Perspectives**
Workshop-Proceedings
ed. by S. Küpper, G. Subklew, R.-D. Wilken (2011), 83 pages
ISBN: 978-3-89336-744-3
124. **Thermo-Mechanical Properties of Mixed Ion-Electron Conducting Membrane Materials**
by B. Huang (2011), 130 pages
ISBN: 978-3-89336-746-7
125. **Growth, Etching, and Stability of Sputtered ZnO:Al for Thin-Film Silicon Solar Cells**
by J. I. Owen (2011), xv, 192 pages
ISBN: 978-3-89336-749-8
126. **Entwicklung geträgerter Ba_{0,5}Sr_{0,5}Co_{0,8}Fe_{0,2}O_{3-δ} Sauerstoff-Permeationsmembranen**
von F. Schulze-Küppers (2011), ii, 119 Seiten
ISBN: 978-3-89336-752-8
127. **Development of the 2-Component-Injection Moulding for Metal Powders**
by A. P. Cysne Barbosa (2011), XIV, 150 pages
ISBN: 978-3-89336-753-5

128. **Performance of Tungsten-Based Materials and Components under ITER and DEMO Relevant Steady-State Thermal Loads**
by G. H. Ritz (2011), X, 128 pages
ISBN: 978-3-89336-755-9
129. **Experimentelle Bestimmung und numerische Simulation von Viskositäten in Schlackesystemen unter Vergasungsbedingungen**
von T. Nentwig (2011), 156 Seiten
ISBN: 978-3-89336-756-6
130. **Development of Thin Film Oxygen Transport Membranes on Metallic Supports**
by Y. Xing (2012), iv, 117 pages
ISBN: 978-3-89336-765-8
131. **Release of Inorganic Trace Elements from High-Temperature Gasification of Coal**
by M. Bläsing (2012), XVIII, 145 pages
ISBN: 978-3-89336-772-6
132. **Rauchgasseitige Korrosion von Nickelbasislegierungen für zukünftige 700°C-Dampfkraftwerke**
von F. Lüttschwager (2012), 145 Seiten
ISBN: 978-3-89336-773-3
133. **In-Situ Raman Spectroscopy: A Method to Study and Control the Growth of Microcrystalline Silicon for Thin-Film Solar Cells**
by S. Muthmann (2012), x, 134 pages
ISBN: 978-3-89336-774-0
134. **Remote sensing of sun-induced fluorescence for improved modeling of gross primary productivity in a heterogeneous agricultural area**
by A. Schickling (2012), xvi, 135 pages
ISBN: 978-3-89336-775-7
135. **Untersuchung der Ladungsträgerkonzentration und -beweglichkeit in mikrokristallinen Siliziumlegierungen mit Hall-Effekt und Thermokraft**
von C. Sellmer (2012), 159 Seiten
ISBN: 978-3-89336-778-8
136. **Development of thin film inorganic membranes for oxygen separation**
by H. J. Moon (2012), XII, 118 pages
ISBN: 978-3-89336-781-8
137. **Influence of Material and Testing Parameters on the Lifetime of TBC Systems with MCrAlY and NiPtAl Bondcoats**
by P. Song (2012), V, 126 pages
ISBN: 978-3-89336-783-2

138. **Strömungsmechanische Modellierung eines Brenngaserzeugungs-
systems**
von F. Scharf (2012), vi, 223 Seiten
ISBN: 978-3-89336-784-9

Brennstoffzellen-Bordstromaggregate ermöglichen im mobilen Sektor eine energieeffiziente Stromerzeugung für Anwendungen mit erhöhtem Bordstrombedarf. Dieses Buch befasst sich mit der vollständigen strömungsmechanischen Modellierung (CFD) der Kernkomponenten eines Brenngaserzeugungssystems und darauf aufbauend der Weiterentwicklung der einzelnen Reaktoren. Hierzu wurde die CFD-Modellbibliothek zur vollständigen Beschreibung der Kernkomponenten in CFD-Gesamtmodellen erweitert. Auf Basis der hergeleiteten CFD-Modelle wurde die nächste Generation der Kernkomponenten der Brenngaserzeugung entwickelt. Die Reaktoren zeichnen sich dabei durch eine erhöhte Modularbarkeit und ein einfacheres und kompakteres Design der integrierten Wärmeübertrager aus.

Autor:

Florian Scharf studierte an der Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule Aachen (RWTH Aachen) Maschinenbau mit der Studienrichtung Verfahrenstechnik. Seit 2008 beschäftigt er sich am Institut für Energie- und Klimaforschung – Brennstoffzellen (IEK-3) im Forschungszentrum Jülich mit der strömungsmechanischen Modellierung von Brenngaserzeugungssystemen für die Anwendung in mobilen Brennstoffzellen-Systemen. Der Inhalt dieses Buches wurde von der RWTH Aachen als Dissertation zur Erlangung des akademischen Grades eines Doktors der Ingenieurwissenschaften genehmigt.

Institut:

Die Forschungsaufgaben des Instituts für Energieforschung – Brennstoffzellen (IEK-3) sind auf die Realisierung von Hoch- und Niedertemperaturbrennstoffzellen sowie von entsprechenden Stacks oder Systemen für stationäre oder mobile Anwendungen ausgerichtet. Ferner umfassen die verfahrens- und systemtechnischen Entwicklungen die Bereitstellung von Apparaten zur Brenngaserzeugung. Diese Arbeiten werden von physikalischen-chemischen Grundlagenuntersuchungen sowie Systemanalytischen Studien der Energieverfahrenstechnik begleitet.

